N° d'ordre 461

# THESE

*présentée*

A L'UNIVERSITÉ PAUL-SABATIER DE TOULOUSE

*pour obtenir*

le GRADE de DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

*par*

Alain D. CHAPUIS

Docteur de Spécialité

---

# Caractéristiques radiologiques de l'atmosphère des mines d'uranium Application à la radioprotection

Soutenue le 7 janvier 1971, devant la Commission d'examen

| | |
|---|---|
| MM. D. BLANC | *Président* |
| J. PLANQUES | *Examinateurs* |
| J. FONTAN | |
| A. GAUVENET | |
| J. MANQUENE | |
| J. PRADEL | |

N° d'ordre 461

# THESE

*présentée*

A L'UNIVERSITÉ PAUL-SABATIER DE TOULOUSE

*pour obtenir*

le GRADE de DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

*par*

Alain D. CHAPUIS

Docteur de Spécialité

---

# Caractéristiques radiologiques de l'atmosphère des mines d'uranium Application à la radioprotection

Soutenue le 7 janvier 1971, devant la Commission d'examen

| | |
|---|---|
| MM. D. BLANC | *Président* |
| J. PLANQUES | *Examinateurs* |
| J. FONTAN | |
| A. GAUVENET | |
| J. MANQUENE | |
| J. PRADEL | |

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

# UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE

# TABLEAU DU PERSONNEL

# SCIENCES

## DIRECTION DE L'UNIVERSITE

| | | | |
|---|---|---|---|
| M LARENG | Président de l'Université | M. MARTIN | 2ème Vice-Président |
| M MATHIS | 1er Vice-Président | | |

## HONORARIAT

| | | | |
|---|---|---|---|
| M BLAIZOT | Doyen honoraire | M. DUPOUY | Membre de l'Institut, Doyen honoraire, Directeur Général honoraire du C.N.R.S., Professeur honoraire |
| M CAPDECOMME | Doyen honoraire, Recteur honoraire | | |
| M DELTHEIL | Doyen honoraire, Recteur honoraire, Professeur honoraire | M. DURAND | Doyen honoraire |
| | | M. MATHIS | Doyen Honoraire |
| | | M. MORQUIER | Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut |
| M GAUSSEN | Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut | M. SECONDAT | Professeur honoraire |
| M JACQUES | Professeur honoraire | M. TEISSIE-SOLIER | Professeur honoraire |
| M MIGNONAC | Professeur honoraire | M. VANDEL | Professeur honoraire, Membre de l'Institut |

## PROFESSEURS

| | | | |
|---|---|---|---|
| M ESCANDE | Mécanique des Fluides, Membre de l'Institut | M. LALAGUE | Mathématiques Générales |
| M CASTERAS | Géologie, Correspondant de l'Institut | | |
| M BEDOS | Chimie | M BOUIGUE | Astronomie |
| M CAPDECOMME | Minéraloaie | M. COUCHET | Physique |
| | | M LEJEUNE | Chimie |
| M NOUVEL | Biologie Générale | M. LASCOMBES | Botanique |
| M GALLAIS | Chimie, Correspondant de l'Institut | M ASSELINEAU | Chimie Biologique |
| M DURAND | Physique | M MAURET | Chimie Systématique |
| M FERT | Physique | M AGID | Physiologie |
| M DIEHL | Agronomie | M MONTANT | Cryptogamie |
| M LESBRE | Chimie Organique | M GAUTIER | Physique |
| M BRUNEL | Physiologie Végétale | M CRUMEYROLLE | Mathématiques |
| M HURON | Mathématiques Appliquées | M GOURINARD | Géologie |
| M MARGULIS | Pédologie | M. PULOU | Minéralogie |
| M TRICHE | Chimie Analytique et Spectrographie | M CAMBOU | Physique Spatiale |
| M LEDOUX | Zoologie Appliquée | M MIQUEL | Chimie |
| M RIVALS | Agriculture | M LACOSTE | Electrotechnique |
| M PERRIER | Physique | M THIBAULT | Mécanique Rationnelle et Appliquée |
| M MATHIS | Chimie | M MONTEL | Chimie Physique et Electrochimie |
| M ORLIAC | Géochimie et Minéralogie | M MASCART | Mathématiques |
| M LAFOURCADE | Physique | M MEDIONI | Psychophysiologie |
| M ANGELIER | Zoologie | M THIRRIOT | Hydrodynamique E N S E I H T |
| Mlle de FERRE | Botanique | M BRENON | Géologie |
| M FARRAN | Minéralogie et Géotechnique | M LAFON | Calcul Différentiel et Intégral |
| M LAUDET | Physique Théorique et Calcul Numérique | M RAYNAUD P | Physiologie Animale |
| M SERFATY | Biologie Animale | M ZALTA | Chimie Biologique |
| M NOUGARO | Hydraulique Générale et Appliquée | M SEVELY | Electrotechnique |
| M LAGASSE | Electrotechnique | M POMMIEZ | Mathématiques |
| M GARDY | Génie Chimique | M REY | Biologie Végétale |
| M BLANC | Physique Nucléaire | M COULOMB | Physique |
| M BIREBENT | Electronique Appliquée | M TRINQUIER | Physique |
| M VOIGT | Chimie Minérale | M MARONI | Chimie |
| M LEREDDE | Botanique | M BEETSCHEN | Biologie Générale |
| M LELUBRE | Géologie | M GRUAT | Mécanique des Fluides (Hydraulique) |
| M TROCHAIN | Botanique | M DERACHE | Physiologie Animale |

## PROFESSEURS ASSOCIES

M SAKUMA

## PROFESSEURS SANS CHAIRE

| | | | |
|---|---|---|---|
| M HAMANT | Botanique | M JEANNIN | Chimie Minérale |
| Mme BRUNEL | Physiologie Végétale | M BERTRAND | Chimie |
| Mlle BERDUCOU | Physiologie Végétale | M SATGE | Chimie Organique |
| M PICCA | Physique | M DESQ | Mathématiques |
| M MERIC | Mathématiques Appliquées | M MAHENC | Chimie |
| Mme LECAL | Zoologie | M LATTES | Chimie |
| M BUGAREL | Génie Chimique | M ROCARD | Electronique |

| | |
|---|---|
| M MIROUSE | Géologie |
| M PILOD | Physique |
| M. LARROQUE | Physique |
| M BARRANS | Chimie |
| Mme LAFON | Mathématiques |
| Mlle LAPEYRE | Mathématiques - Informatique |
| M DAT | Mécanique des Fluides |
| M. TRUCHASSON | Mécanique |
| M. PESCIA | Physique |
| M. HOFFMANN | Electronique |
| M. SOUQUET | Géologie |
| M. SCHNEIDER | Biologie Cellulaire |
| M. DEGEILH | Physique |
| M. FALLOT | Biologie Végétale (Viticulture et Arboriculture) |
| M. POILBLANC | Chimie |
| M. TOUZE | Physiologie Végétale |
| M. FRASNAY | Mathématiques |
| M. CASSAGNAU | Zoologie |
| M. GUERIN | Mathématiques |
| M. SICARD | Biologie génétique |
| M. de LOTH | Chimie Physique |
| M. ENJALBERT | Chimie |
| M. MARTIN J.C. | Génie Electrique |

## MAITRES DE CONFERENCES

| | |
|---|---|
| M BLANCHARD | Mathématiques |
| M BITSCH | Zoologie |
| M FONTAN | Physique Nucléaire |
| M CAUSSINUS | Mathématiques Appliquées |
| M MARTY | Physique Industrielle |
| M BAUDRAS | Chimie Biologique |
| M DURAND Ph | Physique |
| M LEFEUVRE | Electronique E N S E I H T |
| M SAPORTE | Physique |
| M ATTEIA | Mathématiques |
| M IMBERT | Psychophysiologie |
| M ANGELINO | Génie Chimique |
| M. BEAUFILS | Informatique |
| M MATHEAU | Electronique (E.N.S.E.E.I.H.T.) |
| M. COTTU | Génie Mécanique |
| M. THENOZ | Génie Civil |
| M. DABOSI | E.N.S.C. |
| M. CALVET | Mécanique des Fluides (E N S E I H T ) |
| M. PAGANI | Physique |
| M. CUPPENS | Mathématiques |
| M PERENNOU | Informatique |
| M REY | Génie Electrique |
| M MATHIEU | Chimie Analytique |
| M. TRANNOY | Physique (E N S E I H T ) |
| M. CASTAGNETTO | Mathématiques (E N S E I H T ) |
| M CASTAN | Informatique |
| M GILOT | Génie Chimique (Institut du Génie Chimique) |
| M LANTELME | Chimie Industrielle |
| M CALMON | Techniques Agricoles |
| Mlle BARBANCE | Mathématiques |
| M VERDIER | Physique |
| M GILLY | Génie Mécanique |
| M VEDRENNE | Mesures Physiques |
| M. ROUTIE | Génie Chimique |
| M. REME | Mesures Physiques |
| M. MARAL | Physique |

## MAITRE DE CONFERENCES ASSOCIE

M PON

## CHARGES D'ENSEIGNEMENT

| | |
|---|---|
| M. MAUSS | Mécanique |
| M PRADINES | Mathématiques |
| M BARTHET | Mathématiques |

## PERSONNEL DE L'UNIVERSITE AFFECTE A L'INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES APPLIQUEES DE TOULOUSE

### PROFESSEURS

| | |
|---|---|
| M ROQUES | Chimie Industrielle |
| M GRATELOUP | Génie Electrique |
| M CASSIGNOL | Génie Electrique |
| M. CARRARA | Physique |
| M MASO | Génie Civil |
| M. MIRA | Génie Electrique |

### PROFESSEURS SANS CHAIRE

| | |
|---|---|
| M COLLETTE | Physique |

### MAITRES DE CONFERENCES

| | |
|---|---|
| M FAGET | Physique |
| M SCHUTTLER | Physique |
| M LETURCQ | Génie Electrique |
| M SIRIEYS | Génie Civil |
| M DURAND G | Chimie |

### CHARGES D'ENSEIGNEMENT

| | |
|---|---|
| M BROUSSEAU | Physique |
| M LACAZE | Mathématiques |

### ADMINISTRATION

| | |
|---|---|
| M PRINEAU | Secrétaire Général de l Université |

Liste arrêtée le 25 N[illegible] 1971

RESUME

L'objectif de ce travail est de caractériser l'atmosphère des mines d'uranium. Deux parties composent cette étude :

- le comportement du radon et de ses descendants est abordé à la fois théoriquement (par une étude par simulation sur modèles numériques) et expérimentalement ;
- les caractéristiques des aérosols miniers (taille, état de charge, signe de la charge, nature) sont analysées par différentes méthodes ; les résultats obtenus sont interprétés à partir des lois générales de physique des aérosols (diffusion, coagulation, perte sur les parois...).

SUMMARY

The purpose of this work is the general characteristic of atmosphere in uranium mine. This study contains two parts :

- the behaviour of radon and its daughter products is taked into condideration by theoritical method (using simulation with numerical models) and by experimental method ;
- the principal characteristics of mines aérosols (size, charge, value and sign, nature) are analysed by differents ways ; the obtained results are explosed by the means of fundamental laws of the aerosols physics (diffusion, coagulation, wall loss...).

A mes parents,
A ma femme,
A mes enfants

avec toute mon affection

A Monsieur le Professeur BLANC D., Directeur du Centre de Physique Atomique et Nucléaire, qui a bien voulu m'accepter dans son laboratoire et qui me fait l'honneur de présider mon jury de thèse.

A Monsieur le Professeur FONTAN J., dont la grande expérience et l'aide bienveillante et constante m'ont permis de mener a bien ce travail.

En témoignage de ma respectueuse reconnaissance.

Je remercie sincèrement Monsieur le Docteur J. PLANQUES, Professeur de médecine légale à l'Université Paul Sabatier de Toulouse qui a bien voulu accepter de participer au jury chargé de juger mon travail.

Celui-ci a été effectué dans le cadre des laboratoires associés de physique des aérosols regroupant les laboratoires de physique des aérosols de l'Université de Paris VI, du Centre de Physique Atomique et Nucléaire de Toulouse et du S.T.E.P.P.A. du C.E.A..

Monsieur A. GAUVENET, Directeur au C.E.A., a accepté malgré ses nombreuses occupations de venir juger mon travail, je tiens à lui exprimer ma plus sincère reconnaissance.

Monsieur J. PRADEL, Chef du S.T.E.P.P.A., me fait l'honneur de siéger à mon jury ; je lui exprime ma très respectueuse gratitude.

Je remercie également J. MANQUENE, Conseiller médical au C.E.A., d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse.

Il m'est agréable de remercier pour leur collaboration efficace et les nombreuses discussions fructueuses : MM. G. MADELAINE, V. FRANCOIS, E. BLONDEAU; P. DUPORT, J. MAJSAK.

Monsieur A.LOPEZ a étroitement collaboré à la réalisation de ce travail ; qu'il trouve ici l'expression de mes plus sincères remerciements.

Je remercie enfin tous les techniciens du laboratoire et en particulier Monsieur L. LANEGRASSE pour son appui dans les réalisations expérimentales, Mademoiselle G. GUILLE et Monsieur M. BELINGUIER qui se sont chargés de la présentation matérielle de ce mémoire.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE..... page 1

PREMIERE PARTIE : LE RADON ET SES DESCENDANTS A VIE COURTE

CHAPITRE I : METHODES DE MESURE ET MOYENS EXPERIMENTAUX..... 7
I. LE RADON..... 7
I.1 - Méthodes de mesure du radon..... 8
*I.1.A - Charbon actif*..... *8*
*I.1.B - Fioles scintillantes*..... *8*
*I.1.C - Méthodes des deux filtres*..... *8*
*I.1.D - Film photographique*..... *8*
*I.1.E - Emulsion nucléaire*..... *9*
I.2 - Principe de la méthode choisie..... 9
I.3 - Dispositif expérimental..... 10
II. LES DESCENDANTS A VIE COURTE DU RADON ; DETERMINATION DE L'EQUILIBRE ENTRE LE RADON ET SES DESCENDANTS..... 11
II.1 - Bases théoriques..... 11
II.2 - Méthodes de mesure des descendants..... 11
*II.2.A - Méthode spectrométrique*..... *13*
*II.2.B - Mesure de l'activité α totale*..... *19*
*II.2.C - Autres méthodes*..... *23*
*II.2.D - Comparaison des principales méthodes*..... *26*
II.3 - Dispositifs expérimentaux..... 28
*II.3.A - CAP 10*..... *28*
*II.3.B - Spectromètre α*..... *29*

CHAPITRE II : ETUDE SUR MODELE NUMERIQUE DE L'EQUILIBRE RADIOACTIF..... 33
I. PRINCIPES DE BASE..... 33
I.1 - Galerie..... 33
I.2 - Confluence..... 36
I.3 - Dérivation..... 36
I.4 - Source de radon..... 37
II. ETUDE PAR SIMULATION..... 38
II.1 - Mine théorique..... 38
II.2 - Influence de la ventilation..... 39
II.3 - Influence de la longueur d'une galerie..... 40
II.4 - Influence des sources de radon..... 41

CHAPITRE III : RESULTATS EXPERIMENTAUX..... 43
I. LE RADON..... 43
I.1 - Ensemble des résultats..... 43
I.2 - Variation de la concentration en radon..... 44
*I.2.A - Avec le temps*..... *44*
*I.2.B - Avec la distance*..... *48*

I.3 - Discussion..... 48
II. DESCENDANTS..... 49
II.1 - Ensemble des résultats..... 49
*II.1.A - Activité en RaA, RaB, RaC*..... *49*
*II.1.B - $f_A$, $f_B$, $f_C$*..... *49*
*II.1.C - $f_B/f_A$ ; $f_C/f_A$*..... *56*
*II.1.D - $f_{ABC}{}^{WLR}$*..... *56*
*II.1.E - Eat*..... *56*
*II.1.F - Contribution de chaque descendants à l'Eat*... *60*
II.2 - Variation des concentrations des descendants du radon. 60
*II.2.A - Avec le temps*..... *60*
*II.2.B - Avec la distance*..... *60*
*II.2.C - Confluence et dérivation*..... *65*
II.3 - Etude de la nature des descendants solides radioactifs 65
II.4 - Discussion générale..... 67

DEUXIEME PARTIE : CARACTERISATION PHYSIQUE DE L'ATMOSPHERE DES MINES D'URANIUM

CHAPITRE I : PRINCIPE DES METHODES ET MOYENS EXPERIMENTAUX..... 73

I. DETERMINATION DE LA CONCENTRATION EN PARTICULES..... 73
I.1 - Noyaux de condensation..... 73
*I.1.A - Principe*..... *73*
*I.1.B - Dispositifs expérimentaux*..... *73*
I.2 - Compteurs de poussières..... 74
II. DETERMINATION DE LA TAILLE DES PARTICULES..... 74
II.1 - Lois générales..... 74
II.2 - Capteurs..... 76
*II.2.A - Précipitateurs électrostatiques*..... *76*
*II.2.B - Batteries de diffusion*..... *77*
*II.2.C - Etude des conditions relatives au régime de l'air dans les capteurs*..... *80*
III. PRINCIPE DES METHODES DE MESURE..... 81
III.1 - Détermination de la taille des particules à l'aide des batteries de diffusion..... 81
*III.1.A - Méthode exhaustive*..... *81*
*III.1.B - Méthode de Fuchs*..... *81*
*III.1.C - Méthodes des proportions invariables*..... *81*
III.2 - Détermination de la taille des particules par la mesure de la concentration en particules chargées..... 82
III.3 - Détermination de la taille des particules chargées.... 84
III.4 - Limites des méthodes..... 85
*III.4.A - Prélèvement*..... *85*
*III.4.B - Précipitateurs électrostatiques*..... *85*
III.5 - Dispositifs expérimentaux..... 91
III.6 - Appareillage divers..... 91

CHAPITRE II : CONSIDERATIONS THEORIQUES..... 93

I. PARTICULES ULTRAFINES..... 93

I.1 - Définitions..... 93

I.2 - Conditions d'existence..... 93

I.3 - Temps de vie..... 96

II. NOYAUX DE CONDENSATION..... 96

II.1 - Sédimentation..... 96

II.2 - Diffusion..... 97

*II.2.A - Laminaire..... 97*

*II.2.B - Turbulente..... 97*

*II.2.C - Ordinaire..... 97*

II.3 - Coagulation..... 99

*II.3.A - Coagulation brownienne..... 99*

*II.3.B - Coagulation gradiente..... 101*

*II.3.C - Coagulation brownienne + gradiente..... 102*

*II.3.D - Coagulation turbulente..... 102*

II.4 - Perte sur les parois..... 103

III - PARTICULES RADIOACTIVES..... 105

CHAPITRE III : RESULTATS EXPERIMENTAUX..... 109

I. SITUATION DES EXPERIENCES..... 109

I.1 - 3 points près d'un chantier..... 109

I.2 - Un point sur le retour d'air proche de deux chantiers. 109

I.3 - Un point sur un retour d'air lointain..... 109

II. PARTICULES ULTRAFINES..... 111

II.1 - Mise en évidence..... 111

II.2 - Temps de vie..... 111

II.3 - Discussion..... 112

III. NOYAUX DE CONDENSATION..... 113

III.1 - Concentration en noyaux de condensation..... 113

*III.1.A - Sources..... 113*

*III.1.B - Variations de la concentration en noyaux.... 114*

III.2 - Etat de charge..... 117

*III.2.A - Près d'un chantier..... 117*

*III.2.B - Sur un retour d'air..... 118*

*III.2.C - Discussion..... 118*

III.3 - Taille..... 118

*III.3.A - Totalité des noyaux..... 118*

*III.3.B - Noyaux de condensation chargés..... 123*

*III.3.C - Noyaux de condensation neutres..... 124*

*III.3.D - Variation de la taille avec la distance..... 124*

*III.3.E - Discussion..... 125*

III.4 - Nature..... 126

III.5 - Particules radioactives..... 126

*III.5.A - Spectre granulométrique..... 126*

III.6 - Discussion..... 130

*III.6.A - Concentration en particules..... 130*

*III.6.B - Etat de charge..... 130*

*III.6.C - Taille..... 130*

*III.6.D - Nature..... 132*
*III.6.E - Conclusion partielle..... 132*

CONCLUSION..... *135*

*GLOSSAIRE..... 139*

*ANNEXE 1 : Schéma de désintégration du radon..... 143*
*ANNEXE 2 : Description de la radioprotection en France..... 145*
*ANNEXE 3 : Calcul de l'Eat et du WLR..... 149*
*ANNEXE 4 : Etude expérimentale et sur modèle de l'inhalation des aérosols dans le système respiratoire..... 151*

BIBLIOGRAPHIE..... 157

## AVANT-PROPOS

A la fin du siècle dernier les établissements miniers de Joachimstaal (Tchécoslovaquie) et de Schneeberg (Allemagne) exploitant le cobalt, le zinc et le nickel se reconvertirent afin d'exploiter la pechblende. Beaucoup de mineurs employés dans ces mines décédèrent rapidement après avoir contracté une affection communément appelée par les mineurs "Bergkrankheit" (mal des montagnes). Les symptômes cliniques de cette affection ne sont visibles sur la victime qu'après environ 10 ans de travail minier. HARTING et HESSE (Ha-4) furent les premiers chercheurs à diagnostiquer dès 1879 le "Bergkrankheit" appelé depuis cancer du poumon. Suivant leurs traces PIRCHAN et SIKL (Pi-1) ont fait la relation entre le radon et les cancers du poumon. Les travaux qu'ils effectuèrent furent confirmés par PELLER (Pe-1) dans l'étude qu'il entreprit entre 1929 et 1938, ainsi que BEHOUNEK (Be-1). Au Schneeberg ce sont LUDWIG et LORENSEN (Lu-3) qui les premiers suggérèrent que la présence de radon en quantité importante était responsable des sarcomes pulmonaires observés chez les mineurs décédés. ROSTOSKI, SAUPE et SCHMAR (Ro-3) entreprirent une étude clinique et pathologique dès 1921 qui mit en évidence le grand nombre de cancers du poumon dans ces mines.

Plus tard la découverte de l'énergie liée à l'atome entraîna l'exploitation systématique des éléments fissiles (Uranium, radium, thorium). Les travaux d'exploitation de ces substances radioactives exposent, d'après une étude épidémiologique récente (confirmant les faits antérieurs),le personnel à des risques biologiques certains (tableau 1) (Do-1, Du-1, Gi-1, Ha-5, Me-1, Mi-1, Mi-3, Mu-1, St-1, St-2).

De nombreuses autres études comparatives donnant des résultats convergents ont été faites de par le monde (Wa-1, Sa-1).

Tout ce faisceau de résultats amena de nombreux chercheurs à s'intérroger sur l'influence du radon (Ar-1, Av-1, Du-2, Ho-1, Ho-2, Ho-3, Ha-1, Ir-1, Ja-3, Re-2).

EVANS et GOODMAN (Ev-1) en 1940, puis CHAMBERLAIN et DYSON (Ch-1) en 1956 furent les initiateurs de telles études. A partir d'inhalations expérimentales sur des rats CHAMBERLAIN et DYSON (Ch-1) conclurent que la plus grande partie de la dose de radiation reçue par la trachée et les bronches est due aux descendants du radon sous forme libre (c'est-à-dire non encore fixés aux poussières et noyaux de condensation). Par contre ALTSHULER (Al-1) et JACOBI (Ja-1, Ja-2) ont montré que la contribution de ces particules ultrafines sur l'appareil respiratoire est faible. Ce point n'est pas,à ce jour encore,totalement éclairci (Cr-1, Fu-4, Se-1).

Quoiqu'il en soit,un premier souci des responsables publics et privés a été de fixer une norme de sécurité pour l'irradiation subie par les mineurs. Les résultats de CHAMBERLAIN et DYSON ont conduit l'C.I.P.R. (Comité International de Protection Contre les Radiations) à définir la concentration maximale admissible (C.M.A.) pour le radon à :

$$(CMA)_{Rn} = \frac{3\ 10^{-6}}{1+1000f}\ \mu Ci/cm^3 \qquad (Ic\text{-}1)$$

f... fraction (en activité) des ions RaA libres. Pour f = 0,10 (d'après CHAMBERLAIN)
$(CMA)_{Rn} = 3\ 10^{-8}\ Ci/m^3$

| Localisation | Exposition cumulée(1) W.L.M. | Nombre de décès par cancer du poumon par an pour 10 000 habitants | | Rapport observés / attendus |
|---|---|---|---|---|
| | | attendus(2) | observés | |
| Mines d'uranium (Colorado) | 120 | 2,8 | 5,3 | 1,8 |
| | 240 | 2,7 | 12,8 | 4,8 |
| | 600 | 3 | 7,4 | 2,4 |
| | 1320 | 3,2 | 25,4 | 7,9 |
| | 2800 | 4,1 | 55,5 | 13,5 |
| | 6000 | 3,3 | 153,8 | 46,6 |
| Mines métalliques (De-3) | 600 | 7 | 19 | 2,9 |
| Mines de Spath-Fluor (De-3) | 1500 | 1,6 | 38 | 24 |
| Schneeberg (Wa-1) | 6500 | 3,4 | 165 | 47 |

*(1) L'exposition cumulée est évaluée en multipliant la concentration en radon dans l'air (en unité de $1,3.10^5$ Mev) par la durée de travail exprimée en mois. Les chiffres indiquent des valeurs moyennes.*

*(2) La valeur de référence correspondant au nombre de cancers attendus est égale au taux annuel de cancer du poumon par tranche d'âge dans les régions intéressées.*

TABLEAU 1

d'après HAMARD *(Hamard J. CEA R 3583 ,1968)*

Mais la difficulté de mesurer "f" et les réserves émises à propos de la toxicité de ces particules ultrafines ont amené de nombreux pays à choisir d'autres normes de sécurité (Tableau 2).

| CMA 40 h ($Ci/m^3$) | $10^{-8}$ | $3\ 10^{-8}$ | $10^{-7}$ | $3\ 10^{-7}$ |
|---|---|---|---|---|
| Auteurs | ALTSHULER JACOBI | CIPR (1959) | W L | A.I.E.A. Euratom France |

TABLEAU 2

Le W L Américain (dont le calcul est donné en annexe 3) tient seul compte du fait que dans la plupart des cas, dans les mines, les descendants du radon ne sont pas

en équilibre avec leur parent dans l'air inhalé. En France le règlement minier autorise un facteur correctif de 2 pour tenir compte globalement du déséquilibre radioactif. Il est bien évident que le danger radiologique sera d'autant plus grand que l'équilibre sera proche. Quant à la norme la plus sévère proposée par ALTSHULER et JACOBI, elle a pour base un modèle simple d'inhalation tenant compte des caractéristiques des particules inhalées (taille, nature, solubilité, etc...).

Ainsi deux motivations d'ordre différent semblent à la base de ces différentes normes ; d'une part tenir compte de l'état d'équilibre entre le radon et ses descendants (W L américain, norme française), d'autre part faire intervenir les caractéristiques physiques des particules inhalées (C.I.P.R., JACOBI).

D'un côté, il faut étudier le comportement du radon et de ses descendants :

- lieux de formation
- variation temporelle
- influences diverses
- concentrations, etc...

et d'un autre côté, il faut caractériser les particules présentes :

- lieux de formation
- granulométrie
- état de charge
- nature
- influence diverses
- concentrations, etc...

---

# INTRODUCTION

Le radon qui est la principale source du danger d'irradiation interne est, avec le thoron, isotope du même gaz rare, responsable de la majeure partie de la radioactivité naturelle. Toutes les roches contenant du radium sont sources de radon. Dans les endroits confinés (caves, travaux miniers...) (Vi-1, Du-3, Bo-1) de grandes quantités de radon peuvent s'accumuler. Une mine d'uranium se présente schématiquement comme un puits central sur lequel se greffent à chaque niveau les galeries conduisant aux chantiers d'exploitation. Pour éviter une trop forte accumulation de radon une importante ventilation est mise en place entraînant un déséquilibre considérable entre le gaz et ses descendants. Les chantiers, sources principales de radon, sont de petites dimensions et les vieux travaux sont isolés par des barrages. Le gaz en se désintégrant émet des descendants solides radioactifs de période inférieure à une demi-heure sous forme de particules ultrafines (quelques Å). Ces particules possèdent un très fort coefficient de diffusion et sont donc rapidement fixées sur les noyaux de condensation et poussières présents dans l'atmosphère minière. Cette fixation entraîne la formation d'aérosols radioactifs dont les caractéristiques physiques (granulométrie, concentration, forme, nature, état de charge...) conditionnent leur rétention dans le système respiratoire et donc leur toxicité.

Les problèmes évoqués en avant-propos ont été la motivation de ce travail qui est composé de deux parties à la fois distinctes et complémentaires.

La première partie explique le comportement du radon et de ses descendants dans cette atmosphère particulière (ses lieux de formation, son évolution dans le temps, etc)

Les fortes concentrations en radon et en descendants d'une part, les impératifs miniers d'autre part m'ont conduit à faire des choix dans les méthodes et moyens d'expérimentation. Je présente et justifie ces choix dans le premier chapitre.

Le problème du comportement du radon est ensuite abordé sous deux aspects différents :

- théoriquement (chapitre II) à partir de modèles numériques qui permettent par simulation d'étudier séparément l'action de divers paramètres (débit de ventilation, longueur des galeries, importance des sources...). En effet il est extrêmement difficile dans l'atmosphère minière de faire la part des différents facteurs qui interviennent ;
- expérimentalement (chapitre III) en mesurant "in situ" l'état d'équilibre entre le radon et ses descendants dans différentes conditions. On peut ainsi confronter résultats théoriques et expérimentaux, vérifier le domaine de validité des hypothèses faites dans les modèles et prévoir l'utilisation pratique de ces derniers.

La deuxième partie aborde l'étude des caractéristiques des particules présentes dans l'atmosphère minière. Les particules radioactives seront détectées par scintillation, tandis que les noyaux de condensation et poussières le seront par transmission de lumière. Les particules chargées seront piégées par précipitation électrostatique et le rayon moyen des aérosols sera obtenu à l'aide de batteries de diffusion. Le choix des méthodes et moyens expérimentaux appropriés, conditionné (comme en première partie) par les impératifs miniers, fait l'objet du premier chapitre.

Dans le deuxième chapitre, je tente de faire le bilan des facteurs qui interragissent :

- à l'origine, influence de l'activité minière
- coagulation (normale, turbulente, etc...)
- diffusion (ordinaire...)
- dépôt sur les parois
- etc...

et qui font qu'en chaque point de la mine on se trouve en face d'un cas particulier pour la taille, la nature, la charge de l'aérosol.

Le troisième chapitre présente les résultats expérimentaux obtenus. A la lumière du deuxième chapitre certaines interprétations peuvent être données, pour les particules ultrafines par exemple.

En annexe, je présente une application pratique de ce travail : calcul de la CMA à partir des caractéristiques expérimentales des particules et des modèles de dépôt des aérosols dans le système respiratoire.

---

# PREMIERE PARTIE

LE RADON
ET
SES DESCENDANTS A VIE COURTE

Cette partie est essentiellement consacrée à l'étude du comportement du radon et de ses descendants dans l'atmosphère d'une mine d'uranium.

Dans le premier chapitre je décris les différentes méthodes de mesure du radon d'une part et des descendants d'autre part, qui ont été mis au point. Je présente aussi les moyens que j'ai personnellement utilisés et j'en justifie les choix.

Dans le deuxième chapitre j'étudie par simulation sur un modèle théorique l'influence de divers paramètres sur l'équilibre radon-descendants.

Enfin le troisième chapitre me permet, à la lumière de nombreux résultats expérimentaux de vérifier certaines hypothèses du modèle (pour en définir l'utilisation pratique et les limites) et d'évaluer l'importance des paramètres en présence.

# CHAPITRE I

## METHODES DE MESURE ET MOYENS EXPERIMENTAUX

### I. LE RADON

Le taux d'émanation du radon de la surface des sols normaux, dans l'atmosphère, est en moyenne de 0,12 $\mu$Ci/jour par $m^2$ de surface du sol (Ev-2). Cependant la dilution, la diffusion abaissent la concentration en radon dans l'air à la surface du sol dans la gamme 0,01 à 1 pCi/l d'air.

En contraste avec ces concentrations en radon relativement faibles, quelques très hautes concentrations peuvent exister dans certaines mines métalliques. Dès 1950 JACOE (Ja-3) a observé des concentrations de l'ordre de 200 pCi/l dans des mines de minerais non radioactifs. De même HARRIS (Ha-2) a trouvé des valeurs de 20 pCi/l dans des lieux mals ventilés de mines de zinc, fer et plomb. Plus récemment DUGGAN (Du-3) a étudié l'atmosphère de 12 mines de charbon en Angleterre et trouvé des teneurs de l'ordre de 200 pCi/l.

Dans les 157 mines d'uranium du plateau du Colorado le Service de la Santé Publique des Etats-Unis fit faire quelques 400 mesures en 1952. Des valeurs de 20 000 pCi/l ($2\ 10^{-8}$Ci/l) ont été obtenues pour la concentration du radon dans de nombreux endroits. TSIVOGLOU (Ts-1) a fait une étude identique en 1956 et a trouvé des concentrations de l'ordre de 10 000 pCi/l ($10^{-8}$ Ci/l).

Les quantités de radon accumulées dans les mines d'uranium sont fonctions à la fois : du taux d'émanation des parois, de l'importance de la ventilation et de la décroissance radioactive du gaz. La température ambiante, l'humidité, ainsi que la pression barométrique absolue ont une grande influence sur le dégagement des parois.

Pour répondre au souci général de protection du personnel deux actions ont été engagées :

- diminuer la concentration en radon (par ventilation naturelle ou forcée, barrages, traçage des galeries en stérile) ;
- contrôler les teneurs en radon (Pr-1, Pr-2, Pr-3, Sm-1). Pour cette dernière action de nombreuses méthodes ont été mises au point dans le monde.

Dans un premier temps, je décrirai le principe des diverses méthodes en soulignant leur intérêt et leurs limites. J'indiquerai ensuite le principe de la méthode que j'ai utilisée dans mon étude.

## I.1 - Méthodes de mesure du radon

### *I.1.A - Charbon actif*

Un volume connu d'air est aspiré au travers d'une cartouche de charbon actif où le radon est adsorbé. Le gaz contenu dans chaque cartouche est dosé ensuite en laboratoire. Par chauffage dans un four, le radon est désorbé et un courant d'argon entraîne le gaz dans une chambre d'ionisation préalablement vidée ; 3 heures après, la valeur du courant d'ionisation permet de connaître la quantité de radon introduite. Cette méthode est discontinue mais permet de doser de faibles concentrations en radon (quelques $10^{-14}$ Ci/l) (Lu-1, Lu-2, Gu-1, De-1).

### *I.1.B - Fioles scintillantes*

Les prélèvements sont effectués à l'aide de fioles cylindroconiques de 125 $cm^3$ enduites intérieurement d'une couche scintillante de ZnS (activé à l'argent). Après un vide préalable réalisé dans le ballon, l'échantillon est prélevé à l'aide d'une aiguille hypodermique solidaire d'un filtre destiné à empêcher l'introduction de particules solides dans la fiole. Après une attente d'au moins 3 heures, le ballon est compté à l'aide d'un ensemble photomultiplicateur échelle de comptage. Le rendement de comptage est de 60% (Bi-1, Bi-2). Cette méthode est utilisée systématiquement dans les mines d'uranium françaises et yougoslaves. Elle présente l'avantage d'être simple à mettre en oeuvre et de ne pas nécessiter une infrastructure trop lourde. Sa sensibilité est fonction du bruit de fond des ballons scintillants mais en moyenne sa limite inférieure est 0,1 pCi/l.

### *I.1.C - Méthode des deux filtres*

Elle a été mise au point par THOMAS (Th-1). L'air est prélevé à 10 l/min pendant 10 minutes à travers un cylindre en métal ($\phi$ = 3,4 cm) muni à chaque extrémité d'un filtre absolu. A la fin du prélèvement, le Radium A, provenant exclusivement du radon du cylindre, collecté sur le filtre de sortie, est immédiatement mesuré à l'aide d'un compteur $\alpha$ à scintillations. La concentration en radon est calculée à l'aide d'une équation tenant compte du débit, du volume du cylindre, du comptage $\alpha$ et du temps de comptage. La méthode est discontinue et suppose le coefficient de diffusion du RaA invariable. La sensibilité est assez bonne.

### *I.1.D - Film photographique*

Mis au point par GEIGER (Ge-1) d'Eberline Instrument Corporation, il consiste en une petite pastille de film photographique sensible aux $\alpha$, positionné dans un repli du badge porté par les mineurs. Le radon pénètre par diffusion dans le volume central et s'y désintègre. On détermine sa concentration en comptant les traces dans l'émulsion. La sensibilité du montage permet de mesurer 100 pCi/l avec une précision de 50 % après une exposition de 4 heures. Plusieurs désavantages limitent cependant son utilisation :

- sensibilité limitée ;
- influence importante de l'humidité ;

- exposition et analyse nécessitant un temps important.

*I.1.E - Emulsion nucléaire*

COSTA RIBEIRO et al. (Co-1) du Centre Médical de New York ont développé un moniteur de radon utilisable pour les faibles concentrations. Par diffusion, le radon entre dans un petit détecteur métallique à travers un filtre opaque en polyuréthane ; les ions de $Po^{218}$ formés par la désintégration du radon sont collectés électrostatiquement sur un film aluminisé de mylar. Les particules $\alpha$ du $Po^{218}$ et $Po^{214}$ produisent des scintillations sur une plaque de sulfure de zinc (activé à l'argent) appliqué sur une émulsion nucléaire. Après développement la densité optique du film est reliée à l'exposition du radon par une courbe d'étalonnage. En plus de l'importante influence de l'humidité, le désavantage de cette méthode consiste en son utilisation dans un groupe restreint de conditions d'irradiations ; entre environ 7 à 100 $10^{-9}$ Ci/heures/litres d'air.

1.2 - Principe de la méthode choisie

Dans de nombreux cas et en particulier pour l'étude décrite dans la deuxième partie de ce travail, il était nécessaire d'avoir une méthode de mesure continue du radon ; une méthode correspondant à cet impératif a été mise au point dès 1964 par FONTAN (Fo-1). Adaptée aux conditions de la mine (Ch-3), elle permet d'obtenir une description continue de la teneur de l'air en radon en un point fixe. L'air à analyser est débarassé de tous les descendants solides du radon dans la traversée d'un filtre absolu (figure 1). Cet air pénètre ensuite dans un volume étanche (chambre

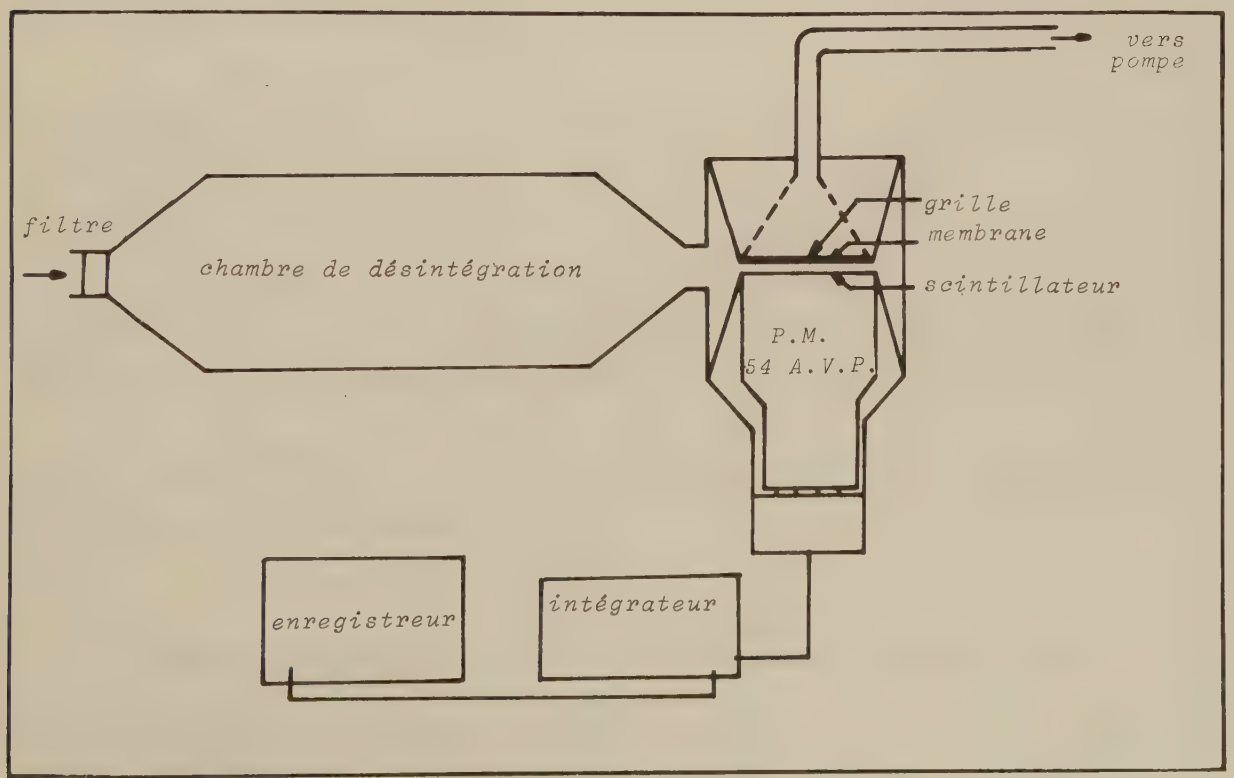



*FIGURE 1 : Schéma de l'appareil de mesure continue de la concentration en radon.*

cylindrique en aluminium). Un filtre placé à sa sortie recueille les descendants du radon qui se sont formés pendant la traversée de la chambre de désintégration. Un ensemble scintillateur-photomultiplicateur placé en regard du filtre permet le comptage des particules α collectées. Une électronique associée autonome et robuste permet l'enregistrement des variations de l'activité collectée en fonction du temps. La teneur de l'air en radon est déduite de l'activité α collectée à l'aide d'une relation simple faisant intervenir le volume de la chambre et le débit d'aspiration.

I.3 - Dispositif expérimental

La forte teneur de l'air en radon régnant dans l'atmosphère minière a permis d'utiliser des chambres de désintégration de faible volume (54 et 15 litres). L'aspiration de l'air est faite à l'aide de cols soniques alimentés par air comprimé au travers de filtres millipores de type RA (1,2 μ de porosité). La sensibilité de l'installation (correspondant à 1 impulsion/seconde avec un rendement de 5 % du système de comptage) est de 5,5 pCi/l et 20 pCi/l avec les volumes étanches de 54 l et 15 l. La figure 2 donne les variations de la sensibilité en fonction du volume de la chambre pour différents débits d'aspiration.

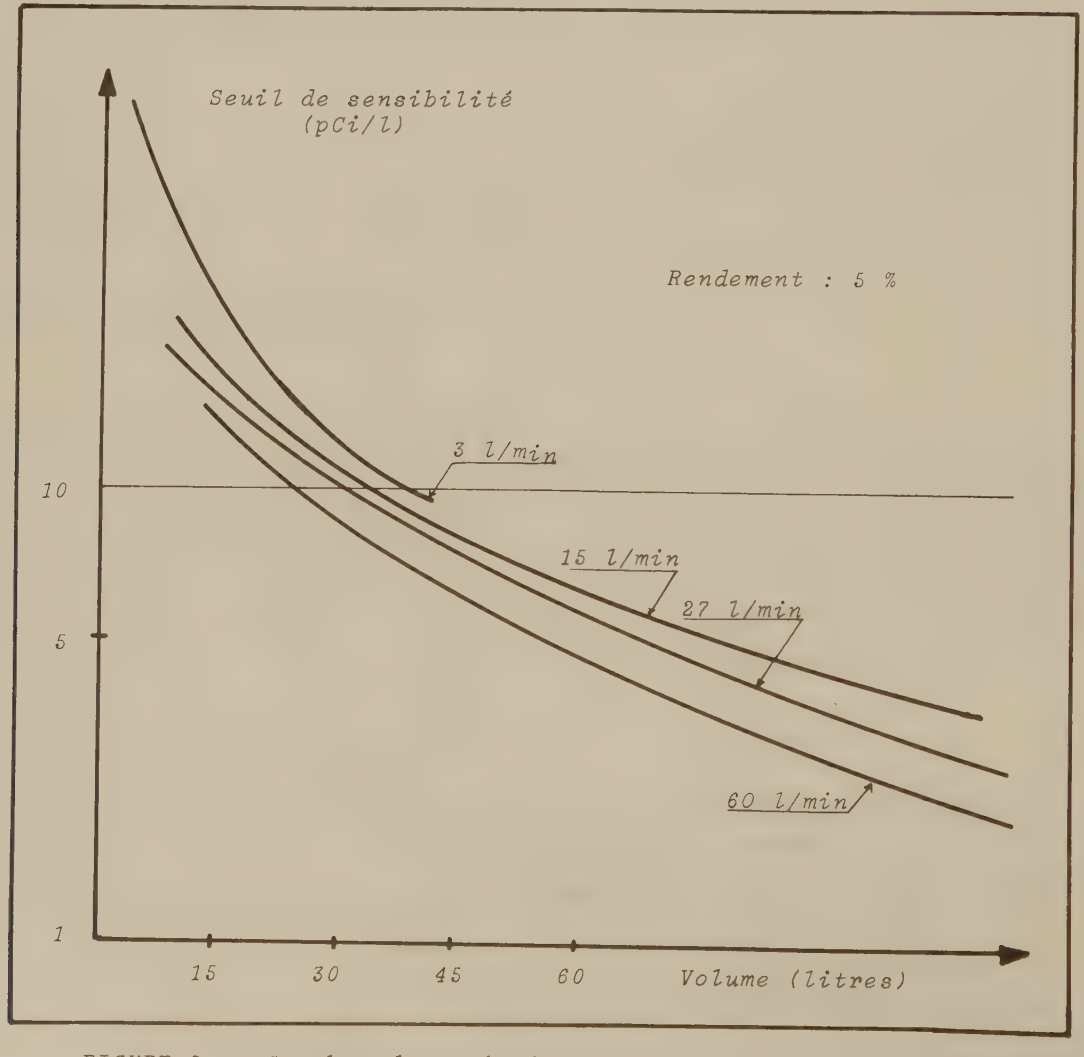



FIGURE 2 : *Courbes de variation du seuil de sensibilité de l'ensemble de mesure du radon en fonction du volume de la chambre de désintégration pour différents débits d'aspiration.*

Lors de brusques variations de la concentration en radon, la réponse de l'installation n'est pas instantanée. Le temps de réponse dépend surtout de la période de décroissance des descendants du radon.

## II. LES DESCENDANTS A VIE COURTE DU RADON ; DETERMINATION DE L'EQUILIBRE ENTRE LE RADON ET SES DESCENDANTS

Les concentrations en descendants radioactifs du radon présents dans l'atmosphère peuvent être déterminées par de nombreuses méthodes. L'une des plus courantes consiste à faire un prélèvement sur filtre et à analyser l'activité α collectée ; deux façons de procéder sont alors possibles.

- soit par méthode spectrométrique : les activités α du RaA et du RaC' sont analysées durant leur décroissance. Une bonne résolution des pics α du RaA et du RaC' (6 et 7,68 MeV) est requise ;
- soit par analyse de l'activité α totale (RaA + RaC') en général durant leur décroissance. Cette méthode nécessite plutôt un bon rendement de détection qu'une bonne résolution. Pour chacune de ces méthodes deux manières de dépouiller sont utilisées :
  - . par étude de l'allure des courbes de décroissance de l'activité α ;
  - . par comptage et résolution mathématique d'un système de 3 équations à 3 inconnues $Q_A$, $Q_B$, $Q_C$.

### II.1 - Bases théoriques : généralités sur les équations de décroissance de l'activité d'un filtre ayant collecté les descendants du radon

Soit le schéma suivant pour la chaîne de désintégration du radon :

$$\text{Radon} \xrightarrow[\alpha]{\lambda_R} \text{Radium A} \xrightarrow[\alpha]{\lambda_A} \text{Radium B} \xrightarrow[\beta]{\lambda_B} \text{Radium C} \xrightarrow[\beta]{\lambda_C} \text{Radium C'} \xrightarrow[\alpha]{}$$

Le radium A et le radium C' sont tous deux émetteurs α.

Le radium C donne en se désintégrant du radium C' qui a une période de $1{,}6\ 10^{-4}$ secondes. Pour les études pratiques le radium C peut être traité comme étant émetteur α. Les notations utilisées sont rassemblées dans le tableau 3.

La variation du nombre d'atomes de $^{218}$Po sur le filtre pendant une aspiration est égale à la différence entre l'accumulation de ces atomes sur le filtre et leur désintégration, soit donc :

$$\frac{dN_A}{dt} = Q_A V - \lambda_A N_A$$

$$\text{d'où :} \quad N_A = \frac{Q_A V}{\lambda_A}(1-e^{-\lambda_A t}) \qquad (1)$$

De la même façon pour le radium B :

$$\frac{dN_B}{dt} = Q_B V + \lambda_A N_A - \lambda_B N_B$$

$$N_B = \frac{Q_A V}{(\lambda_B - \lambda_A)} (1 - e^{-\lambda_A t}) + \left(\frac{\lambda_A Q_A V}{\lambda_B(\lambda_A - \lambda_B)} + \frac{Q_B V}{\lambda_B}\right) (1 - e^{-\lambda_B t}) \qquad (2)$$

et pour le Radium C :

$$\frac{dN_C}{dt} = Q_C V + \lambda_B N_B - \lambda_C N_C$$

$$N_C = \frac{\lambda_A Q_A V}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} (1 - e^{-\lambda A t}) + \left(\frac{\lambda_A Q_A V}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{Q_B V}{(\lambda_C - \lambda_B)}\right)(1 - e^{-\lambda_B t})$$

$$+ \left(\frac{\lambda_A \lambda_B Q_A V}{\lambda_C(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} + \frac{\lambda_B Q_B V}{\lambda_C(\lambda_B - \lambda_C)} + \frac{Q_C V}{\lambda_C}\right)(1 - e^{-\lambda_C t}) \qquad (3)$$

Après l'arrêt de l'aspiration :

$$\frac{dn_A}{dt'} = -\lambda_A n_A$$

$$n_A = N_A^\circ \, e^{-\lambda_A t'} \qquad (4)$$

pour le radium C :

$$\frac{dn_C}{dt'} = \lambda_B n_B - \lambda_C n_C$$

$$n_C = \frac{\lambda_A \lambda_B N_A^\circ \, e^{-\lambda_A t'}}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} + \left(\frac{\lambda_A \lambda_B N_A^\circ}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{\lambda_B N_B^\circ}{\lambda_C - \lambda_B}\right) e^{-\lambda_B t'}$$

$$+ \left(\frac{\lambda_A \lambda_B N_A^\circ}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} + \frac{\lambda_B N_B^\circ}{\lambda_B - \lambda_C} + N_C^\circ\right) e^{-\lambda_C t'} \qquad (5)$$

L'activité totale ($R_\alpha^t$) sur le filtre s'écrit donc :

$$R_\alpha^t = \lambda_A n_A + \lambda_C n_C$$

| Eléments | Symbole | Constante radio-active | Nombre d'atomes par litres d'air | Nombre d'atomes présents sur le filtre | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | pendant l'aspiration | à la fin de l'aspiration | pendant la décroissance |
| $^{222}_{86}Rn$ | Rn | $\lambda_R$ | $Q_R$ | | | |
| $^{218}_{84}Po$ | RaA | $\lambda_A$ | $Q_A$ | $N_A$ | $N_A^\circ$ | $n_A$ |
| $^{214}_{82}Pb$ | RaB | $\lambda_B$ | $Q_B$ | $N_B$ | $N_B^\circ$ | $n_B$ |
| $^{214}_{83}Bi$ | RaC | $\lambda_C$ | $Q_C$ | $N_C$ | $N_C^\circ$ | $n_C$ |
| $^{214}_{84}Po$ | RaC' | $\lambda_{C'}$ | $Q_{C'}$ | $N_{C'}$ | $N_{C'}^\circ$ | $n_{C'}$ |

*t : variable temps*
*$t_a$ : temps d'aspiration*
*t' : temps lors de la décroissance.*

$$f_A = \frac{\lambda_A Q_A}{\lambda_R Q_R} \quad ; \quad f_B = \frac{\lambda_B Q_B}{\lambda_R Q_R} \quad ; \quad f_C = \frac{\lambda_C Q_C}{\lambda_R Q_R}$$

TABLEAU 3

II.2 - Méthodes de mesure des descendants

*II.2.A - Méthode spectrométrique*

*A.a - Méthode des deux comptages*

-Principe de la méthode : Les activités du RaA et du RaC' sont déterminées séparément à deux temps $t_1$ et $t_2$ de la décroissance de l'activité $\alpha$ d'un filtre. Le premier comptage fournit l'activité en RaA et RaC' au temps $t_1$, le second l'activité en RaC' au temps $t_2$. On dispose alors de trois équations pour résoudre un système à trois inconnues : $Q_A$, $Q_B$, $Q_C$.

-Résolution du système : Premier comptage :

Pour simplifier l'écriture, je pose :

$$K_1 = \frac{\lambda_B \lambda_C}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_A - \lambda_C)} \quad ; \quad K_2 = \frac{\lambda_A \lambda_C}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_B - \lambda_C)}$$

$$K_3 = \frac{\lambda_A \lambda_B}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} \quad ; \quad K_4 = \lambda_B \lambda_C \left[ \frac{1}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} + \frac{1}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_B - \lambda_C)} + \frac{1}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_A - \lambda_C)} \right]$$

$$K_5 = \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_C} \quad ; \quad K_6 = \frac{\lambda_C}{\lambda_C - \lambda_B}$$

L'intégration de $t_1$ à $t_1+t_c$, $t_c$ étant le temps de comptage, donne l'activité sur le filtre.

$$C_{A1} = \int_{t_1}^{t_1+t_c} [R\alpha]_A \cdot dt$$

$$C_{A1} = \frac{Q_A v\ (1 - e^{-\lambda_A t_a})\ e^{-\lambda_A t_1}}{\lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t_c})$$

$$C_{C1} = \int_{t_1}^{t_1+t_c} [R\alpha]_C \cdot dt$$

$$C_{C1} = Q_A v \left\{ \frac{K_1}{\lambda_A}(1-e^{-\lambda_A t_a})(1-e^{-\lambda_A t_c})e^{-\lambda_A t_1} + \frac{K_2}{\lambda_B}(1-e^{-\lambda_B t_a})(1-e^{-\lambda_B t_c})e^{-\lambda_B t_1} \right.$$

$$\left. + \frac{K_3}{\lambda_C}(1-e^{-\lambda_c t_a})(1-e^{-\lambda_c t_c})e^{-\lambda_c t_1} + \frac{K_4}{\lambda_C}(1-e^{-\lambda_A t_a})(1-e^{-\lambda_c t_c})e^{-\lambda_c t_1} \right\} +$$

$$Q_B v \left\{ \frac{K_5}{\lambda_C}(1-e^{-\lambda_c t_a})(1-e^{-\lambda_c t_c})e^{-\lambda_c t_1} + \frac{K_6}{\lambda_B}(1-e^{-\lambda_B t_a})(1-e^{-\lambda_B t_c})e^{-\lambda_B t_1} \right\} +$$

$$Q_c v \left\{ \frac{1}{\lambda_c}(1-e^{-\lambda_c t_a})(1-e^{-\lambda_c t_c})e^{-\lambda_c t_1} \right\}$$

Je pose :

$$X_1 = \frac{1}{\lambda_A}(1-e^{-\lambda_A t_a})(1-e^{-\lambda_A t_c}) \cdot e^{-\lambda_A t_1}$$

$$X_2 = \left\{ \frac{K_1}{\lambda_A}(1-e^{-\lambda_A t_a})(1-e^{-\lambda_A t_c})e^{-\lambda_A t_1} + \frac{K_2}{\lambda_B}(1-e^{-\lambda_B t_a})(1-e^{-\lambda_B t_c})e^{-\lambda_B t_1} + \right.$$

$$\left. \frac{K_3}{\lambda_C}(1-e^{-\lambda_c t_a})(1-e^{-\lambda_c t_c})e^{-\lambda_c t_1} + \frac{K_4}{\lambda_C}(1-e^{-\lambda_A t_a})(1-e^{-\lambda_c t_c})e^{-\lambda_c t_1} \right\}$$

$$Y_2 = \left\{ \frac{K_5}{\lambda_C}(1-e^{-\lambda_c t_a})(1-e^{-\lambda_c t_c})e^{-\lambda_c t_1} + \frac{K_6}{\lambda_B}(1-e^{-\lambda_B t_a})(1-e^{-\lambda_B t_c})e^{-\lambda_B t_1} \right\}$$

$$Z_2 = \frac{1}{\lambda_C}(1-e^{-\lambda_c t_a})(1-e^{-\lambda_c t_c})e^{-\lambda_c t_1}$$

Il vient :

$$C_{A1} = X_1 \cdot vQ_A$$

$$C_{C1} = X_2 \cdot vQ_A + Y_2 \cdot vQ_B + Z_2 \cdot vQ_C$$

Second comptage :

L'activité donnée par le second comptage au temps $t_2$ s'écrit :

$$C_{C2} = \int_{t_2}^{t_2+t_c} [R\alpha]_C \, dt$$

Soit : $$C_{C2} = X_3.vQ_A + Y_3.vQ_B + Z_3.vQ_C$$

$X_3$, $Y_3$, $Z_3$ étant identiques à $X_2$,$Y_2$,$Z_2$, avec $t_1$ changé en $t_2$.

Systèmes d'équations :

L'expression des concentrations $Q_A$, $Q_B$, $Q_C$ doit être donnée en fonction des comptages expérimentaux $A_1$, $C_1$ et $C_2$ et non des comptages théoriques $C_{A1}$, $C_{C1}$ et $C_{C2}$ :

$$\begin{aligned} A_1 &= \rho v \, X_1 . \, Q_A \\ C_1 &= \rho v \left\{ X_2 \, Q_A + Y_2 \, Q_B + Z_2 \, Q_C \right\} \\ C_2 &= \rho v \left\{ X_3 \, Q_A + Y_3 \, Q_B + Z_3 \, Q_C \right\} \end{aligned}$$

Solution :

$$Q_A = \frac{A_1}{\rho v \; X_1}$$

$$Q_B = \frac{Z_3\left[C_1 - A_1 . \, X_2/X_1\right] - Z_2\left[C_2 - A_1 . \, X_3/X_1\right]}{\rho v \left[Z_3 \, Y_2 - Y_3 \, Z_2\right]}$$

$$Q_C = \frac{Y_3 \left[C_1 - A_1 . \, X_2/X_1\right] - Y_2 \left[C_2 - A_1 . \, X_3/X_1\right]}{\rho v \left[Z_2 \, Y_3 - Z_3 \, Y_2\right]}$$

Calcul d'erreur :

Je tiens compte des erreurs statistiques $\sqrt{A_1}$, $\sqrt{C_1}$, $\sqrt{C_2}$, sur les comptages $A_1$, $C_1$, $C_2$ ainsi que de l'erreur $\Delta V$ sur le débit V et $\Delta\rho$ sur le rendement $\rho$, pour obtenir les expressions générales :

$$\Delta Q_A = Q_A \left\{ \frac{1}{A_1} + \left(\frac{\Delta\rho}{\rho}\right)^2 + \left(\frac{\Delta V}{V}\right)^2 \right\}^{1/2}$$

$$\Delta Q_B = \left\{ \frac{Z_3^2 \left[ C_1^2/\rho^2 V^2 \left\{ 1/C_1 + (\Delta\rho/\rho)^2 + (\Delta V/V)^2 \right\} + (X_2 . \Delta Q_A)^2 \right]}{Z_3 Y_2 - Y_3 Z_2} + \frac{Z_2^2 \left[ C_2^2/\rho^2 V^2 \left\{ 1/C_2 + (\Delta\rho/\rho)^2 + (\Delta V/V)^2 \right\} + (X_3 . \Delta Q_A)^2 \right]}{Z_3 Y_2 - Y_3 Z_2} \right\}^{1/2}$$

$$\Delta Q_C = \left[ \frac{Y_3^2 \left[ C_2^2/\rho^2 V^2 \{1/C_2 + (\Delta\rho/\rho)^2 + (\Delta V/V)^2\} + (X_3 . \Delta Q_A)^2 \right]}{Z_3 Y_2 - Y_3 Z_2} + \frac{Y_2^2 \left[ C_1^2/\rho^2 V^2 \{1/C_1 + (\Delta\rho/\rho)^2 + (\Delta V/V)^2\} + (X_2 . \Delta Q_A)^2 \right]}{Z_3 Y_2 - Y_3 Z_2} \right]$$

Dans une première étape, j'ai supposé que $\Delta V = \Delta\rho = 0$. Cela entraîne :

$$\Delta Q_A = \frac{\sqrt{A_1}}{\rho V X_1}$$

$$\Delta Q_B = \frac{\left[ Z_3^2 \{C_1 + A_1 (X_2/X_1)^2\} + Z_2^2 \{C_2 + A_1 (X_3/X_1)^2\} \right]^{1/2}}{\rho V (Z_3 Y_2 - Y_3 Z_2)}$$

$$\Delta Q_C = \frac{\left[ Y_3^2 \{C_2 + A_1 (X_3/X_1)^2\} + Y_2^2 \{C_1 + A_1 (X_2/X_1)^2\} \right]^{1/2}}{\rho V (Z_3 Y_2 - Y_3 Z_2)}$$

J'ai déterminé les meilleures conditions expérimentales en analysant numériquement ces équations.

J'ai étudié les erreurs théoriques sur la détermination des concentrations $Q_A$, $Q_B$ et $Q_C$ en fonction :

- du temps d'aspiration $t_a$ : L'erreur est prohibitive pour des temps inférieurs à 5 minutes ; sauf pour le RaA ;
- du temps de comptage $t_c$ : L'erreur commise suivant le temps de comptage présente la même variation ;
- des temps de mesure $t_1$ et $t_2$ : J'ai tracé deux réseaux de courbes : pour le temps de la première mesure fixé à 1 minute, et pour le temps de la deuxième fixé à 30 minutes (figure 3).

Il ressort de cette étude que ces différents temps ont une grande importance sur la précision de l'analyse. Cependant le temps de la première mesure ne peut être pris inférieur à 1 minute, pour des raisons de procédure expérimentale .

De même, il ressort qu'il est inutile d'attendre plus de 30 minutes pour le second comptage.

J'ai choisi, pour ces raisons, les conditions expérimentales suivantes :

$t_a$ = 5 min
$t_c$ = 5 min
$t_1$ = 1 min
$t_2$ = 30 min

J'ai tracé, dans ce cas défini comme optimum les erreurs réalisées sur la détermination du RaA, RaB et RaC', en fonction de la concentration de ces mêmes des-

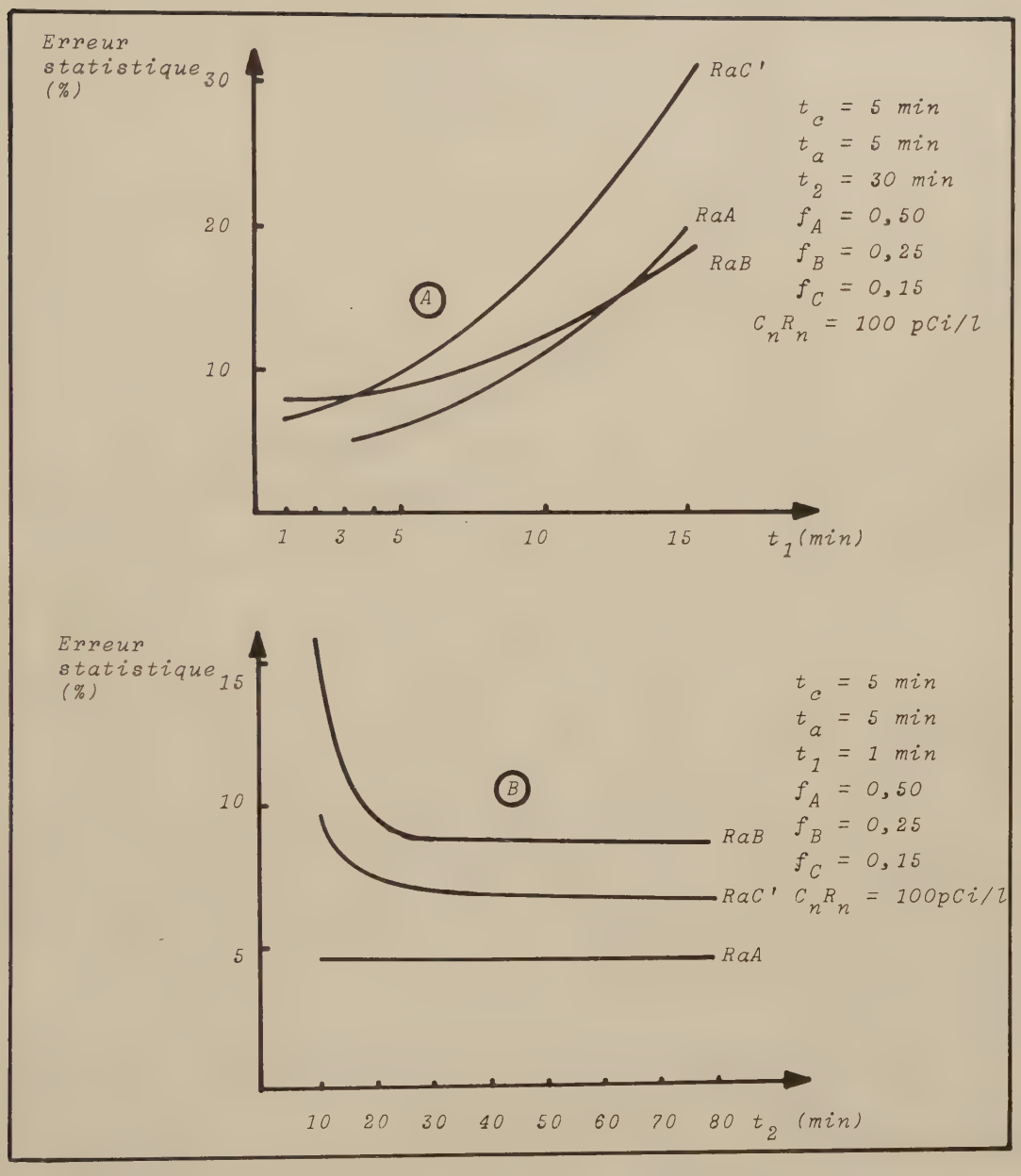



*FIGURE 3* : *Méthode des deux comptages : étude de la variation de l'erreur statistique sur la détermination du RaA, RaB, RaC' en fonction :*
- *du temps $t_1$ de la première mesure (le temps $t_2$ étant fixe) (A)*
- *du temps $t_2$ de la seconde mesure (le temps $t_1$ étant fixe) (B).*

cendants. Ce qui revient à conduire cette étude en fonction de la concentration en radon, dans les conditions de l'équilibre : 1./1./1. (figure 4). Pour une teneur en radon de 100 pCi/l, les erreurs sont inférieures à 8 %.

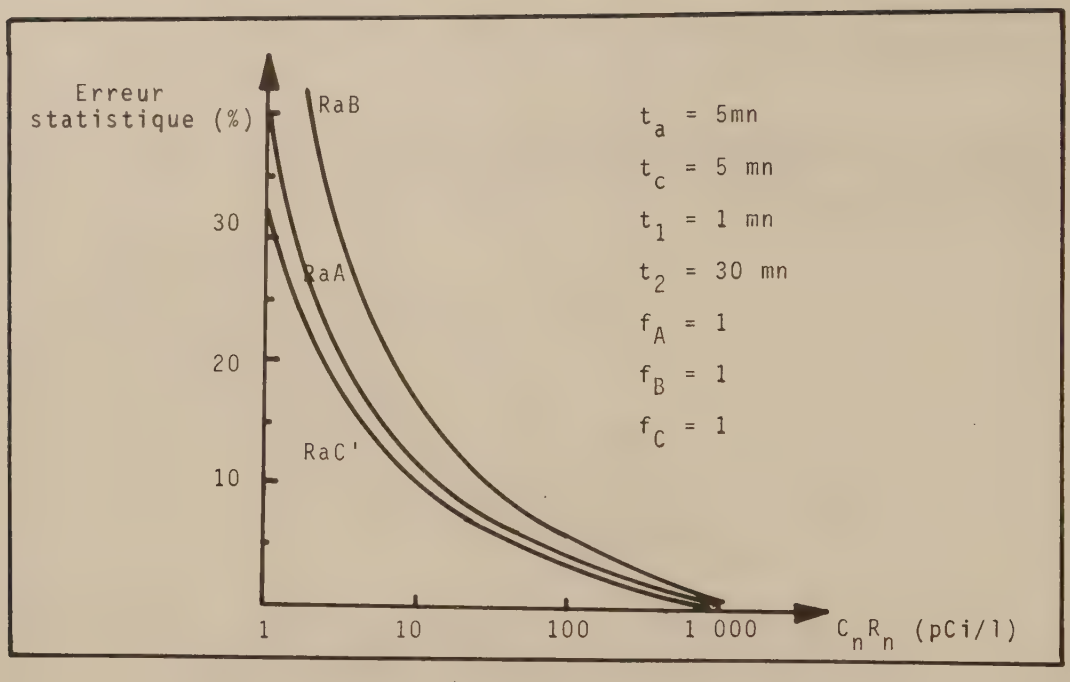



FIGURE 4 : Méthode des deux comptages : étude de la variation de l'erreur statistique sur la détermination du RaA, RaB, RaC' en fonction de la concentration en radon.

*A.b - Comparaison de courbes expérimentales à un réseau de courbes théoriques (Lo-2).*

Les courbes de décroissance de l'activité du RaA et du RaC' sont comparées à un réseau de courbes théoriques, ce qui permet d'obtenir les rapports $f_B/f_A$ et $f_C/f_A$, ainsi que la quantité de RaA contenu dans l'air. D'autre part, on déduit de la mesure de la concentration en radon la valeur de $f_A$, puis $f_B$ et $f_C$. Cette méthode est utilisée en prenant un temps d'aspiration de 3 ou 5 minutes. L'analyse de la décroissance se fait pendant 80 minutes.

J'ai amélioré cette méthode, en dépouillant les courbes expérimentales par interpolation suivant la méthode des moindres carrés (Ra-1). Un programme a été mis au point. Le problème consiste à trouver la meilleure estimation d'une fonction dont le graphe passe par le "nuage" de 20 points expérimentaux. On choisit l'erreur maximale attribuée à chaque point.

Calcul d'erreur :

L'erreur sur la détermination du RaA est l'erreur statistique sur le comptage au début de la décroissance.

Pour le RaB et le RaC', il faut y ajouter un terme dû à la comparaison des courbes expérimentales avec les courbes théoriques.

La détermination de $p = f_B/f_A$ et $q = f_C/f_A$ est en général effectuée avec une incertitude : $\Delta p = \Delta q = 0,1$.

J'obtiens les erreurs propres à cette méthode :

$$\frac{\Delta f_A}{f_A} = \frac{\Delta (R\alpha)_A}{(R\alpha)_A}$$

$$\frac{\Delta f_B}{f_B} = \frac{\Delta f_A}{f_A} + \frac{\Delta \rho}{\rho}$$

$$\frac{\Delta f_C}{f_C} = \frac{\Delta f_A}{f_A} + \frac{\Delta q}{q}$$

La méthode des moindres carrés ramène l'erreur faite sur la détermination de p et q à l'erreur maximale choisie.

*II.2.B - Mesure de l'activité α totale*

*B.a - Méthode des trois comptages*

-Principe de la méthode : Cette méthode proposée par TSIVOGLOU (Ts-2) détermine les concentrations $Q_A$, $Q_B$, $Q_C$ des descendants à vie courte du radon à partir de la mesure de l'activité totale du filtre. La mesure en parallèle de la concentration de l'air en radon permet de déterminer les fractions d'équilibre $f_A$, $f_B$, $f_C$. Durant la décroissance de l'activité d'un filtre, trois comptages $G_1$, $G_2$, $G_3$ sont nécessaires, ils sont effectués aux temps $t_1$, $t_2$, $t_3$. Le problème revient alors à la résolution par l'algèbre matricielle de trois équations à trois inconnues.

Dans la méthode originale, les temps de comptage étaient fixés à 5, 15 et 30 minutes après la fin de l'aspiration. Ici, un calcul d'erreur permet de déterminer la précision en fonction des différents temps d'aspiration et de comptage.

-Résolution du système : Les équations de départ sont les équations classiques données en II-1.

Premier comptage :

Le premier comptage fournit l'activité α totale, au temps $t_1$. On voit facilement qu'en changeant $K_1$ et $K'_1$ avec :

$$K'_1 = 1 + \frac{\lambda_B \lambda_C}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_A - \lambda_C)}$$

l'expression obtenue pour le comptage α total reste identique à l'expression du comptage en RaC' obtenue par la méthode spectrométrique :

$$C_{T1} = \int_{t_1}^{t_1+t_c} (R\alpha)dt$$

L'intégration donne donc :

$$C_{T1} = U_1 . vQ_A + V_1 . vQ_B + W_1 . vQ_C$$

$U_1$, $V_1$ et $W_1$ étant identiques à $X_2$, $Y_2$ et $Z_2$ ($K_1$ ayant été changé en $K'_1$).

Second comptage :

$$C_{T2} = \int_{t_2}^{t_2+t_c} (R\alpha)\ dt$$

soit : $CT_2 = U_2 . vQ_A + V_2 . vQ_B + W_2 . vQ_C$

$U_2$, $V_2$ et $W_2$ étant identiques à $U_1$, $V_1$, $W_1$ ($t_1$ ayant été changé en $t_2$).

Troisième comptage :

$$C_{T3} = \int_{t_3}^{t_3+t_c} (R\alpha)\ dt$$

soit : $C_{T3} = U_3 . vQ_A + V_3 . vQ_B + W_3 . vQ_C$

avec $U_3$, $V_3$ et $W_3$ identiques à $U_1$, $V_1$ et $W_1$ ( $t_1$ étant changé en $t_3$).

Système d'équations :

$$C_{T1} = U_1 . vQ_A + V_1 . vQ_B + W_1 . vQ_C$$
$$C_{T2} = U_2 . vQ_A + V_2 . vQ_B + W_2 . vQ_C$$
$$C_{T3} = U_3 . vQ_A + V_3 . vQ_B + W_3 . vQ_C$$

Solution :

$$Q_A = \frac{1}{v} (R_1 . C_{T1} + S_1 . C_{T2} + T_1 . C_{T3})$$
$$Q_B = \frac{1}{v} (R_2 . C_{T1} + S_2 . C_{T2} + T_2 . C_{T3})$$
$$Q_C = \frac{1}{v} (R_3 . C_{T1} + S_3 . C_{T2} + T_3 . C_{T3})$$

Avec :

$$R_1 = (V_2 . W_3 - W_2 . V_3)/\Delta$$
$$S_1 = (W_1 . V_3 - V_1 . W_3)/\Delta$$
$$T_1 = (V_1 . W_2 - W_1 . V_2)/\Delta$$

$$R_2 = (W_2 . U_3 - U_2 . W_3)/\Delta$$
$$S_2 = (U_1 . W_3 - W_1 . U_3)/\Delta$$
$$T_2 = (W_1 . U_2 - U_1 . W_2)/\Delta$$

$$R_3 = (U_2 . V_3 - V_2 . U_3)/\Delta$$
$$S_3 = (V_1 . U_3 - U_1 . V_3)/\Delta$$
$$T_3 = (U_1 . V_2 - V_1 . U_2)/\Delta$$

et : $\Delta = U_1 . V_2 . W_3 + V_1 . W_2 . U_3 + W_1 . U_2 . V_3 - W_1 . V_2 U_3 - V_1 . U_2 . W_3 - U_1 . W_2 . V_3$

Calcul d'erreur :

L'expression des concentrations $Q_A$, $Q_B$ et $Q_C$ en fonction des comptages expérimentaux $G_1$, $G_2$, $G_3$ est :

$$Q_A = \frac{1}{\rho V} \left[ R_1 . G_1 + S_1 . G_2 + T_1 . G_3 \right]$$
$$Q_B = \frac{1}{\rho V} \left[ R_2 . G_1 + S_2 . G_2 + T_2 . G_3 \right]$$
$$Q_C = \frac{1}{\rho V} \left[ R_3 . G_1 + S_3 . G_2 + T_3 . G_3 \right]$$

Il vient :

$$\Delta Q_A = \frac{\left\{ R_1^2 . G_1 + S_1^2 . G_2 + T_1^2 . G_3 \right\}^{1/2}}{\rho V}$$
$$\Delta Q_B = \frac{\left\{ R_2^2 . G_1 + S_2^2 . G_2 + T_2^2 . G_3 \right\}^{1/2}}{\rho V}$$
$$\Delta Q_C = \frac{\left\{ R_3^2 . G_1 + S_3^2 . G_2 + T_3^2 . G_3 \right\}^{1/2}}{\rho V}$$

J'ai repris l'étude réalisée dans le cas de la méthode des deux comptages : l'influence du temps d'aspiration $t_a$, du temps de comptage $t_c$ et des trois temps de mesure $t_1$, $t_2$, $t_3$ a été déterminée numériquement. On note que :

- la diminution de $t_a$ favorise le RaA tandis que son augmentation entraîne un abaissement des erreurs sur la RaB et le RaC'. Le choix de $t_a$ sera donc une affaire de compromis dans une gamme allant de 5 à 20 minutes;

- $t_1$ doit être le plus proche possible de zéro (figure 5);

Pour me permettre de comparer expérimentalement les différentes méthodes j'ai pris $t_1$ = 1 min (ainsi j'ai la possibilité d'utiliser la méthode des 3 comptages avec le spectromètre α).

- $t_3$ doit être supérieur à 60 minutes (cf. Figure 5) et j'ai choisi comme le S.T.E.P. (Bi-1) 80 minutes.

- $t_1$ et $t_3$ fixés, $t_2$ se détermine aisément à 10 minutes au minimum des erreurs. (figure 5).

Ainsi les conditions expérimentales suivantes se déduisent de cette étude :

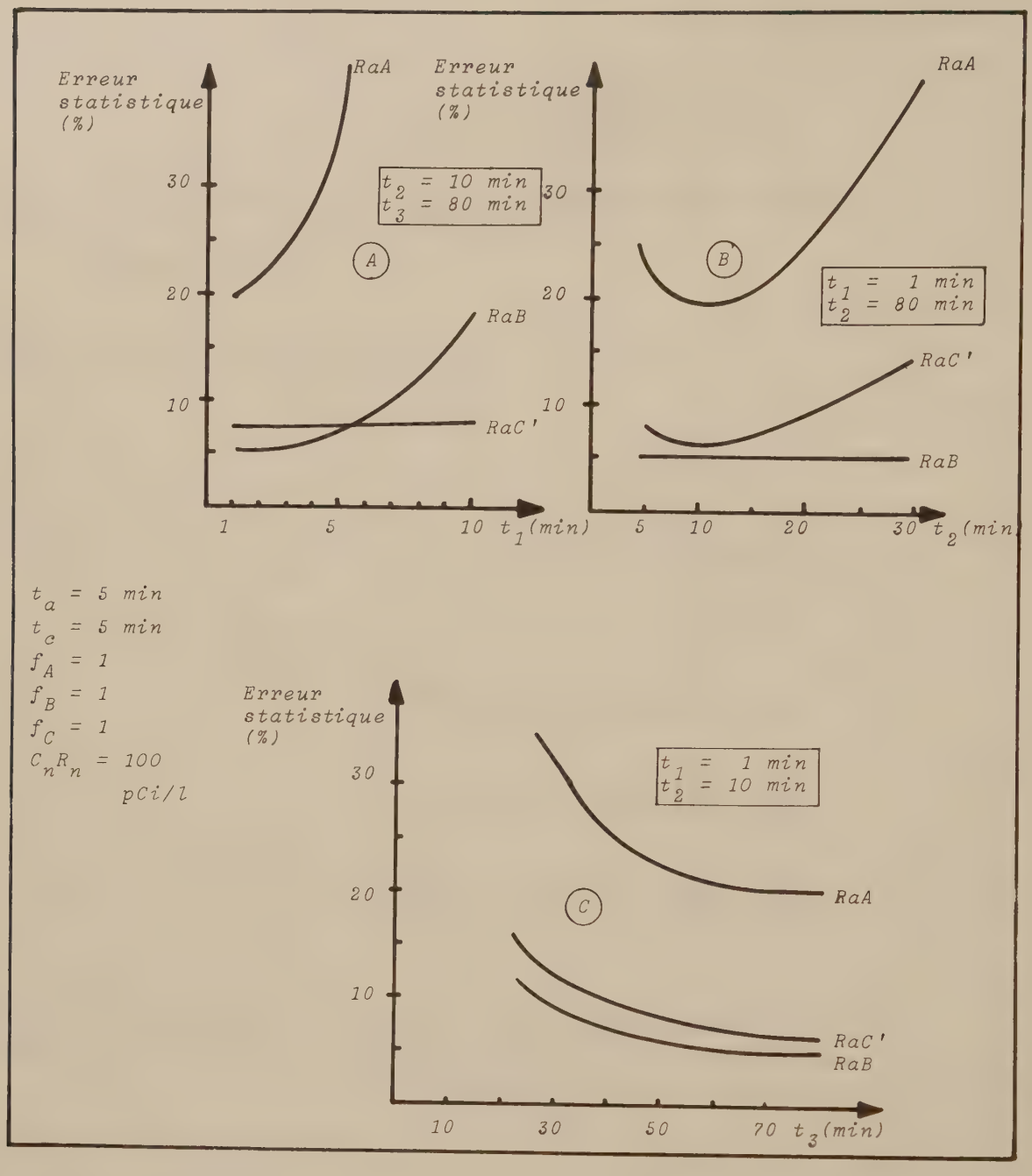



*FIGURE 5* : *Méthode des trois comptages : étude de la variation de l'erreur statistique sur la détermination du RaA, RaB, RaC' en fonction du :*

- *temps de la première mesure ($t_2$ et $t_3$ restant fixes)(A)*
- *temps de la seconde mesure ($t_1$ et $t_3$ restant fixes)(B)*
- *temps de la troisième mesure($t_1$ et $t_2$ restant fixes)(C).*

$t_a$ = 5 min
$t_c$ = 5 min
$t_1$ = 1 min
$t_2$ = 10 min
$t_3$ = 80 min

Pour ces conditions, j'ai calculé l'influence des valeurs des descendants

sur la précision de la mesure (Figure 6). A 100 pCi/l on note des erreurs bien plus importantes qu'en spectrométrie.

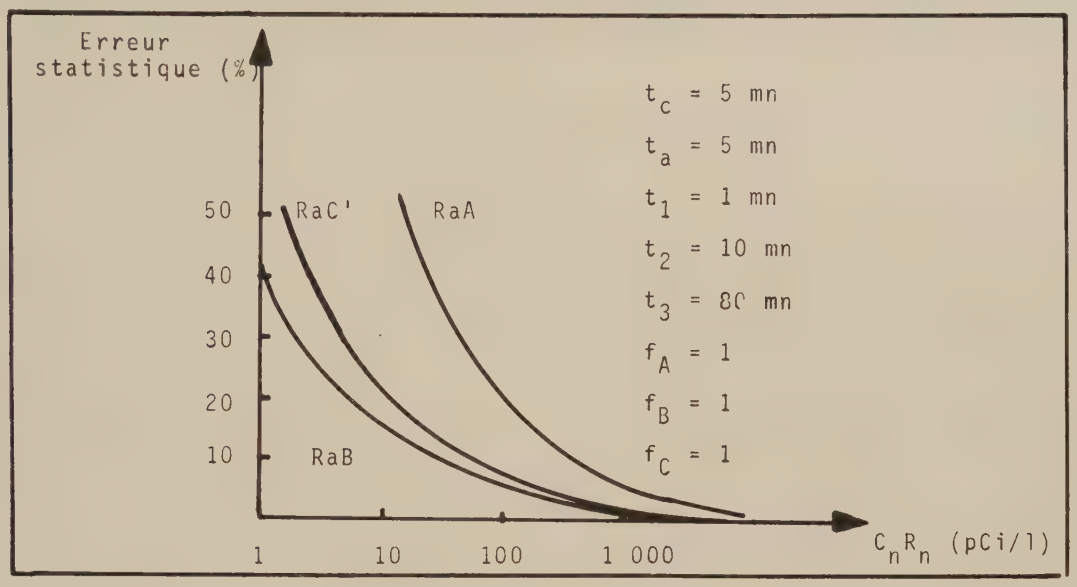



FIGURE 6 : Méthode des trois comptages : étude de la variation de l'erreur statistique sur la détermination du RaA, RaB, RaC' en fonction de la concentration en radon.

*B.b - Comparaison de courbes expérimentales à un réseau de courbes théoriques (Ch-3)*

On peut procéder de la même manière que pour l'analyse des courbes de décroissance par spectrométrie : le temps d'aspiration est alors de 20 minutes. On enregistre durant 80 minutes la courbe de décroissance de l'activité $\alpha$ totale (RaA+ RaC'). La comparaison avec un réseau de courbes théoriques permet d'obtenir les rapports $f_B/f_A$, $f_C/f_A$, ainsi que la quantité de RaA contenue dans l'air de la mine. Une mesure en parallèle de la concentration en radon permet d'en déduire les fractions $f_A$, $f_B$, $f_C$.

L'erreur propre à la méthode sur la détermination du RaA est celle effectuée sur la mesure de l'activité $\alpha$ totale au début de la décroissance. Cette erreur due à l'enregistrement, peut être chiffrée à :

$$\frac{\Delta f_A}{f_A} = 8\%$$

d'où : $\frac{\Delta f_B}{f_B} = \frac{\Delta f_A}{f_A} + \frac{\Delta p}{p}$ $\qquad$ $\frac{\Delta f_C}{f_C} = \frac{\Delta f_A}{f_A} + \frac{\Delta q}{q}$

*II.2.C - Autres méthodes*

-Méthode spectrométrique utilisée par MARTZ (Ma-7) : MARTZ procède par la méthode des deux comptages, mais à l'aide d'un analyseur 400 canaux. L'appareil ne peut être descendu au fond de la mine pour des raisons d'humidité, de fragilité de l'électronique,

de non autonomie de l'appareil : les mesures ne peuvent être effectuées qu'aux retours d'air généraux au jour, ou par prélèvements d'échantillons au fond en des lieux permettant une remontée rapide pour traitement (Ma-1, Li-1).C'est une des méthodes actuellement utilisée dans les mines américaines (Ma-1).

Le calcul d'erreur effectué par cet auteur (à titre de comparaison) est donné sur la figure 7.

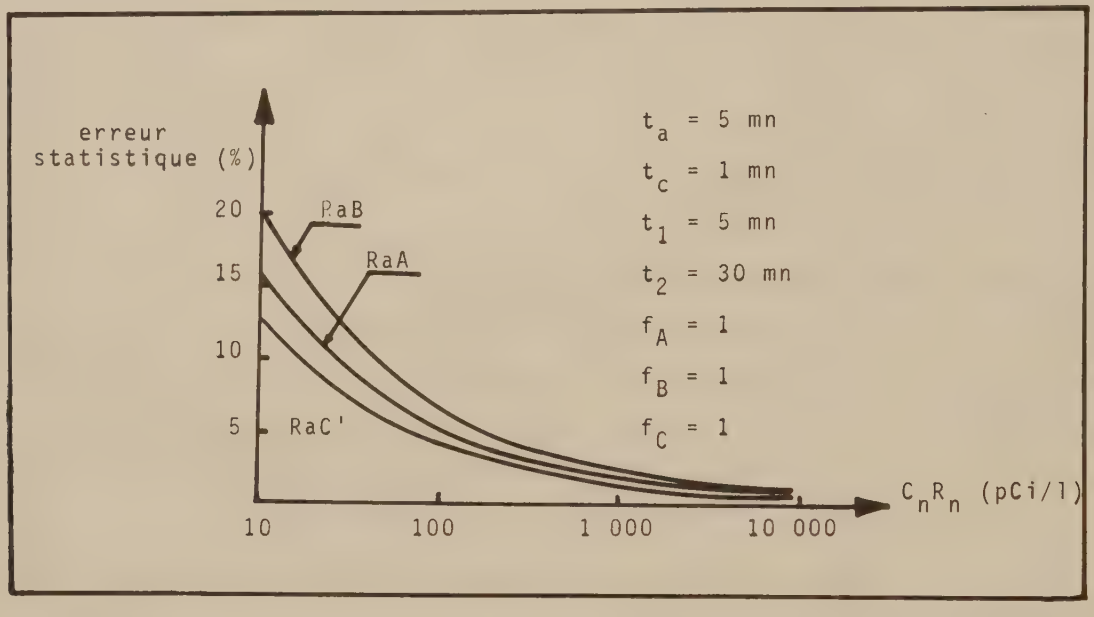



FIGURE 7 : Méthode de MARTZ: étude de la variation de l'erreur statistique sur la détermination du RaA, RaB, RaC' en fonction de la concentration en radon.

- Méthode de TSIVOGLOU (Ts-1) : C'est la méthode qui a déjà été décrite en II.2.B. Elle a été utilisée par de nombreux chercheurs sous différentes formes, (Da-1, Th-3,

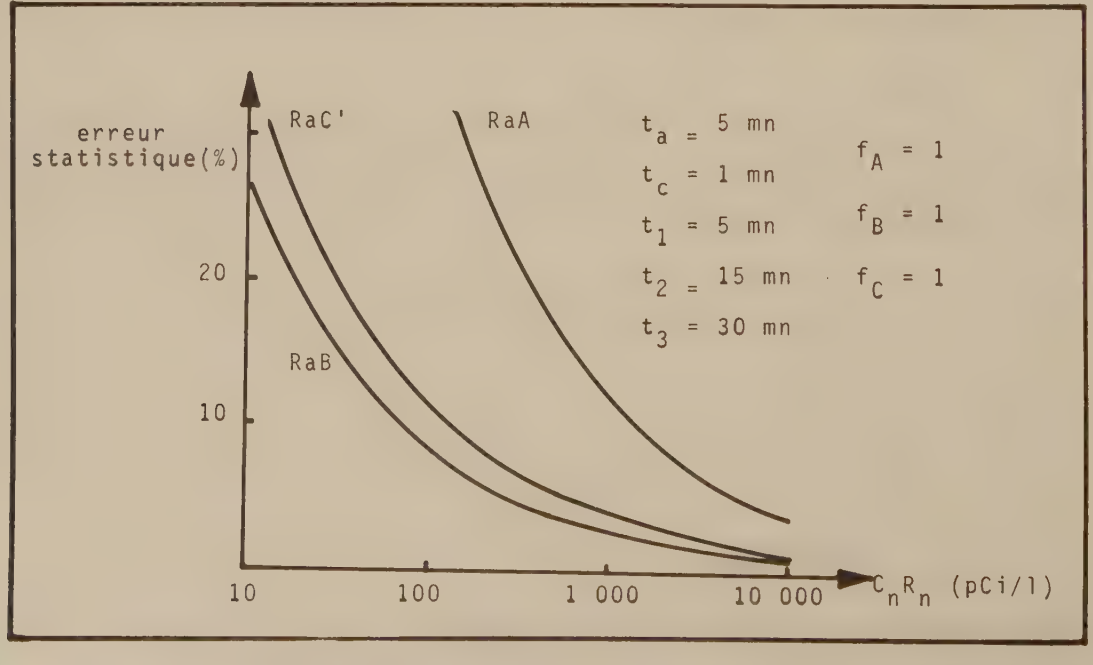



FIGURE 8 : Méthode de TSIVOGLOU : étude de la variation de l'erreur statistique sur la détermination du RaA, RaB, RaC' en fonction de la concentration en radon.

Th-2, Ra-1). Les erreurs effectuées en faisant les trois comptages sur les temps $t_1$, $t_2$ et $t_3$ choisis par TSIVOGLOU sont reportées sur la figure 8 (Ma-7). La détermination du RaA dans le cas de concentrations en radon usuelles dans les mines ($C_nR_n$ = 100 pCi/l) est donc peu précise.

Des solutions graphiques de cette méthode ont été proposées par HARLEY (Ha-3) puis par KUSNETZ (Ku-1).

- Méthode utilisée par le S.T.E.P. (Bi-3) : C'est une amélioration de celle de TSIVOGLOU. Les temps de comptages $t_1$, $t_2$ et $t_3$ choisis (0, 10, 80 min) correspondent aux valeurs optimales. Les comptages étant obtenus à partir d'enregistrements, en première approximation, les erreurs sont surtout des erreurs de lecture.

- Méthodes de détermination du W.L. : Des méthodes rapides ont été proposées par de nombreux auteurs pour évaluer simplement le W.L.

Les temps d'aspiration, de comptage sont déterminés en fonction :

. de la concentration en radon ;
. de la précision voulue.

Je citerai : KUZNETZ (Ku-1), KARTACHEV (Ka-1), MARKOV (Ma-6), ROLLE (Ro-2).

- Spectrométrie $\alpha$ , comptage $\beta$ : Méthode utilisée par LASSEUR (La-3) : Cette méthode procède par comptage simultané de l'activité $\alpha$ donnée par le RaA et le RaC' (à l'aide d'un détecteur à semi-conducteur) et de l'activité $\beta$ donnée par le RaB (à l'aide d'un compteur G.M.). LASSEUR admet que l'erreur faite en supposant que le RaA est en équilibre avec le radon est du même ordre de grandeur que celle faite sur la mesure du radon.

Sur un retour d'air général de Margnac, il obtient, avec une concentration en RaA de $1{,}5.10^{-11}$ Ci/l :

$$f_A = 1 \pm 0{,}1$$
$$f_B = 0{,}9 \pm 0{,}7$$
$$f_C = 0{,}8 \pm 0{,}6$$

La précision s'améliore pour $2{,}2.10^{-9}$ Ci/l :

$$f_A = 1 \pm 0{,}1$$
$$f_B = 0{,}70 \pm 0{,}14$$
$$f_C = 0{,}46 \pm 0{,}09$$

ABRAHAM (Ab-1) propose une méthode graphique à partir des mesures de radioactivité $\alpha$ et $\beta$.

- Comptage $\beta$ : méthode de LOCKHART (Lo-1) : Cette méthode procède par comptage des pics du RaB (0,59-0, 65 MeV) et du RaC' (3,18 - 1,51 MeV). Elle n'est applicable que pour une analyse de l'équilibre radon-descendants dans l'atmosphère libre, à cause

du bruit de fond trop important dans la mine.

- Spectrométrie $\gamma$ : méthode utilisée par LEROY (Le-1) : Cette méthode procède par un seul comptage des pics $\gamma$ du RaB (242-295-352 keV) et du RaC' (609 keV). Comme il est nécessaire de remonter au jour pour effectuer l'analyse à cause du bruit de fond et de l'utilisation d'un analyseur "400 canaux" le comptage est fait durant la décroissance.

- Méthode des traces : GOTCHY (Go-1) utilise des émulsions photographiques développées par E.B.C. (cf. I.1.D) pour une évaluation des concentrations globales en descendants radioactifs. Il multiplie la concentration en radon par un coefficient (0,25 pour 100 pCi/l) pour obtenir la valeur de l'exposition en W.L/heure.

LOVETT (Lo-4) du département de technologie de la "Général Electric" a développé un détecteur au nitrate de cellulose qui enregistre les traces ; après attaque chimique elles sont comptées au microscope . La sensibilité du dosimètre est suffisante pour mesurer des irradiations à partir de 0,3 W.L.M. (Working-Level-Month). Malgré certains désavantages (obligation d'une étape chimique et surtout d'un comptage, sensibilité du détecteur à tous les $\alpha$ quelque soit leur nature) ce dosimètre est en tous points supérieur aux émulsions et autres films. ROCK et LOVETT (Ro-1) ont d'ailleurs mis au point un dosimètre portable qui s'insère dans un montant prévu sur le casque du mineur c'est-à-dire dans la région où respire le mineur.

### *II.2.D - Comparaison des principales méthodes*

Pour comparer les principales méthodes entre elles j'ai défini un cas type :

$$f_A = f_B = f_C = 1$$
$$WL = E\alpha t = 1$$
$$C_n R_n = 100 \text{ pCi/l}$$

J'ai calculé pour chaque méthode les erreurs qui leur sont propres (tableau 4). Pour faire le bilan de toutes les erreurs, il faut tenir compte des erreurs sur :

. la détermination du radon
. le débit d'aspiration
. le rendement de détection
. les temps d'aspiration et de comptage.

Il ressort de cette étude comparative la supériorité des méthodes de spectrométrie $\alpha$ sur celles procédant par mesure de l'activité $\alpha$ totale. En effet, d'une part la précision sur la mesure du RaA est améliorée par l'utilisation de la spectrométrie et d'autre part la possibilité de diminuer le temps de prélèvement jusqu'à 5 minutes est un avantage pour les mesures dans des lieux où la concentration en radon et descendants varie rapidement (chantiers, dépilages, etc...).

| Méthode utilisée | Appareil employé | Temps total de mesure (min) | Avantages | Inconvénients | Erreurs (%) | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | | $\Delta f_A/f_A$ | $\Delta f_B/f_B$ | $\Delta f_C/f_C$ |
| METHODE SPECTROMETRIQUE<br>A. Méthode des deux comptages<br>1. (utilisée au laboratoire) | Spectromètre 4 canaux | 35 | Rapidité de calcul | | 4 | 6 | 3,5 |
| Méthode de MARTZ | Analyseur 400 canaux | 50 | | Utilisable au jour seulement | 5 | 6,5 | 4 |
| B. Méthode de comparaison<br>1. Courbes théoriques expérimentales | Spectromètre 4 canaux | 80 | | Dépouillement assez long | 4 | 14 | 14 |
| 2. Méthode des moindres carrés | Spectromètre 4 canaux | 80 | Commodité | Nécessite l'emploi d'un ordinateur | 4 | 6,5 | 6,5 |
| MESURE DE L'ACTIVITE $\alpha$ TOTALE<br>A. Méthode des trois comptages<br>1. (utilisée au laboratoire) | Spectromètre 4 canaux | 80 | Rapidité de calcul | | 20 | 5 | 7 |
| 2. Méthode de TSIVOGLOU | Appareil de TSIVOGLOU | 45 | | Méthode peu précise | 40 | 8,5 | 11,5 |
| B. Méthode de comparaison de courbes | CAP 10 | 100 | | Dépouillement assez long | 8 | 18 | 18 |

*TABLEAU 4 : Comparaison des différentes méthodes de mesure de l'état d'équilibre radon-descendants.*

II.3 - Dispositifs expérimentaux

Deux types d'appareils ont été mis au point : les CAP 10 (contaminamètre atmosphérique portatif) pour la mesure de l'activité α totale et un spectromètre α. Tout deux répondent aux considérations minières : solidité, robustesse et surtout autonomie ; en effet seul l'air comprimé est partout disponible ; le courant électrique n'est présent qu'aux recettes et dans les endroits privilégiés.

*II.3.A - CAP 10 (pour activité α totale)*

Le principe en est simple :

Une tête de prélèvement aspire l'air ambiant au travers d'un filtre de surface utile de 12,5 $cm^2$. Ce filtre est situé à environ 4 mm d'un ensemble scintillateur (ZnS activé à l'argent) photomultiplicateur (Figure 9). Les impulsions recueillies sont amplifiées, mises en forme et intégrées grâce à une électronique autonome. Le rendement de comptage variable selon les appareils est de l'ordre de 35 %.

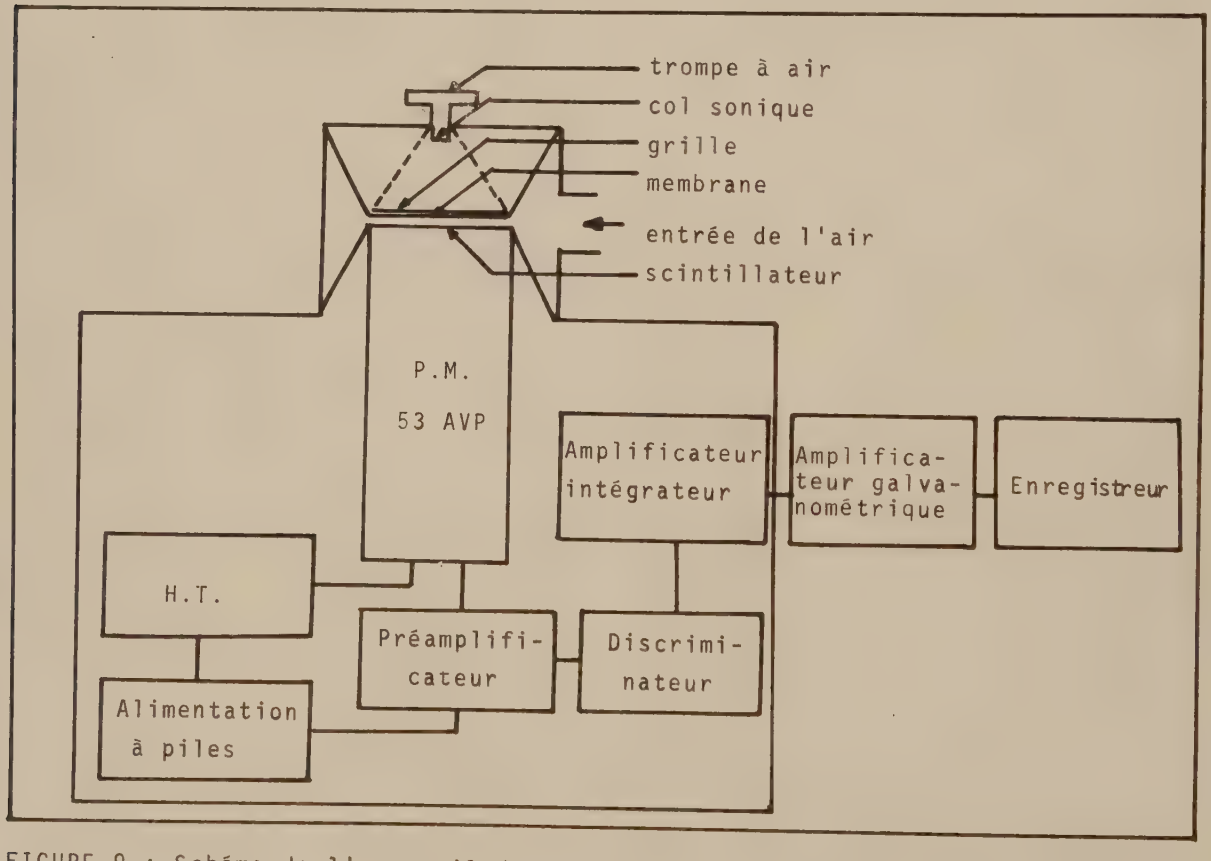



FIGURE 9 : Schéma de l'appareil de prélèvement et de comptage des aérosols radioactifs (CAP 10)

Le prélèvement du dépôt actif du radon est assuré par une trompe à air comprimé. Un jeu de cols soniques étalonnés (entre 0,5 et 50 l/min) permet de faire varier le débit d'aspiration.

Une étude expérimentale de différents filtres dans l'atmosphère de la mine m'a conduit à choisir le filtre millipore de type RA (de diamètre des pores 1,2 μ (Ch-3)).

Le RaA et le RaC' collectés sur le filtre émettent des rayonnements α d'énergie 6 et 7,68 MeV (Annexe 1). Cette différence d'énergie peut introduire des rendements de détection différents pour chacun de ces deux radionucléides et qui peuvent varier avec le seuil de discrimination de l'électronique associée. En fait des mesures expérimentales (à l'aide de sources étalonnées) et un calcul théorique (basé sur la méthode de Monte-Carlo) ont montré qu'aux erreurs expérimentales près (± 5%) on ne notait pas de différence de rendements pour le RaA et le RaC' (Ch-3). Le CAP 10 est utilisé dans les mines d'uranium autant pour des mesures de routine "in situ" (mesure de l'équilibre radioactif radon-descendants, étude de l'énergie totale) que pour des mesures continues en point fixe (granulométrie des aérosols radioactifs).

### *II.3.B - Spectromètre α*

Pour séparer qualitativement la radioactivité α due au RaA de celle due au RaC', j'ai développé une méthode déjà utilisée par FUSAMURA (Fu-5) au Japon, MAC CURDY (Ma-1), LINDEKEN (Li-1, Li-2, Li-3) aux Etats-Unis, DUGGAN (Du-4) en Angleterre, LASSEUR (La-3) en France. Elle consiste à analyser par spectrométrie l'activité α du support collecteur. Les calculs développés dans le paragraphe précédent (II.2.D) ont montré que la précision obtenue sur la détermination des fractions d'équilibre était supérieure à celle obtenue par la méthode du comptage α total. L'utilisation de la méthode spectrométrique dans les mines d'uranium a nécessité l'élaboration d'un matériel autonome, robuste, portatif, d'un fonctionnement simple permettant à des personnes non spécialistes d'effectuer des mesures systématiques en différents points.

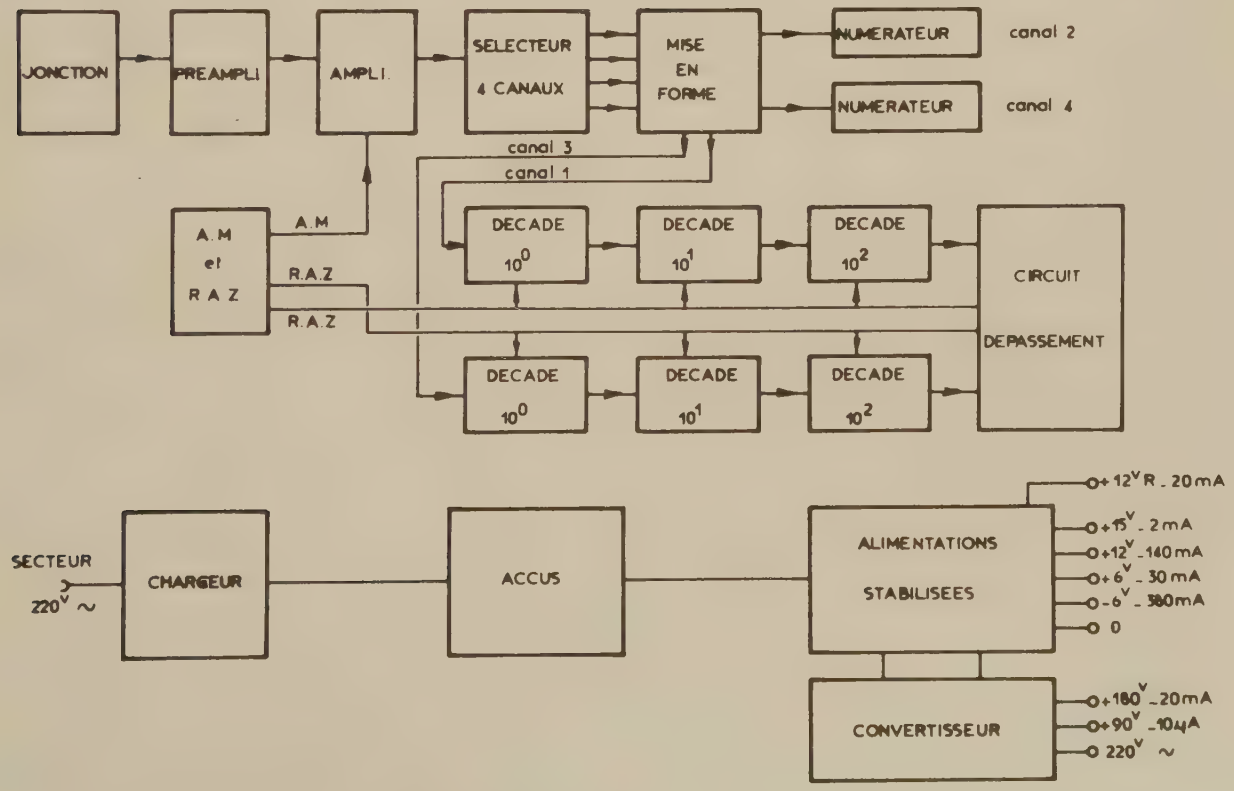



*FIGURE 10 : Schéma synoptique du spectromètre α*

La figure 10 donne le schéma synoptique de l'appareil construit : le détecteur est une jonction de silicium à barrière de surface. Pour une tension de polarisation de 90 volts, le détecteur présente une zone désertée profonde de 150 μ bien supérieure au parcours des particules α du RaA et du RaC' dans le silicium.

L'électronique associée au détecteur se compose : d'un préamplificateur de charge, d'un amplificateur, d'un analyseur d'impulsions à 4 canaux, d'un circuit de mise en forme, d'un système de comptage et de l'alimentation.

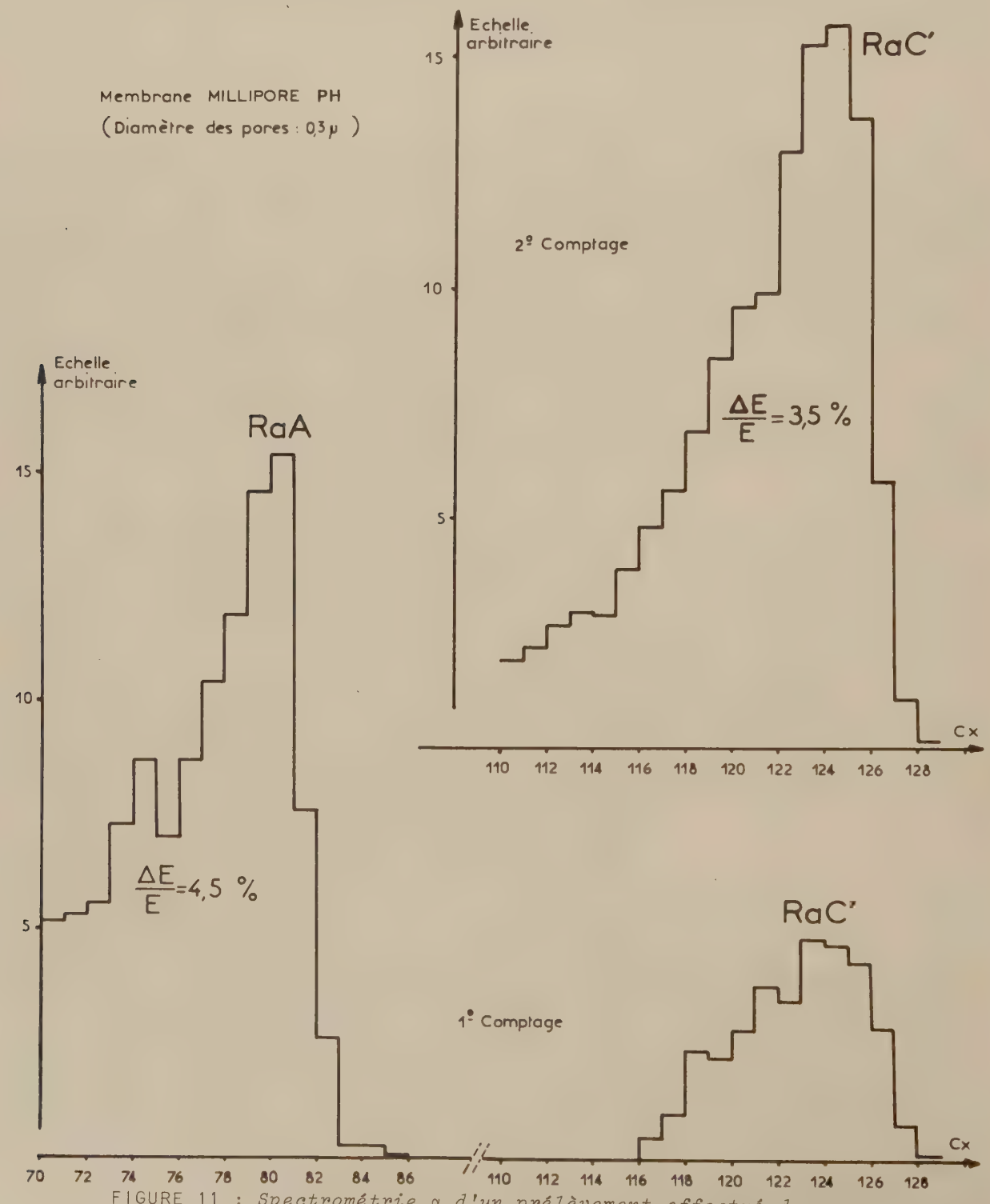



FIGURE 11 : *Spectrométrie α d'un prélèvement effectué dans l'atmosphère de la mine (pour deux temps de la décroissance).*

Les seuils de discrimination des différents canaux sont stables et réglables. A chaque canal correspond une bande d'énergie bien déterminée.

Les tensions d'alimentation sont obtenues à partir d'accumulateurs régulés par des alimentations stabilisées lui conférant une autonomie d'environ 5 heures en marche continue.

La meilleure résolution a été obtenue avec des prélèvements sur filtre millipore de type PH (diamètre de pores = 0,3 µ). Dans ce cas la résolution est de 4,5 % pour le RaA et de 3,5 % pour le RaC' (figure 11) (Ch-4).

En tenant compte de la géométrie source détecteur (surface aspirante de 9 $cm^2$ et surface utile du détecteur de 0,5 $cm^2$) nous avons calculé le rendement théorique du détecteur (à l'aide d'une méthode de Monte-Carlo) en fonction de la distance filtre-détecteur. Une vérification expérimentale a parallèlement été faite. Pour une distance filtre détecteur de 3 millimètres le rendement est de 3,2 %.

Tel qu'il est conçu ce spectromètre α nous a donné entière satisfaction lors des campagnes de mesure. On pourrait cependant améliorer ses performances sur plusieurs points :

- augmenter son autonomie par utilisation de batteries plus puissantes ;
- gagner en résolution en créant un léger vide (de quelques centaines de torrs) dans la partie de comptage (cela a déjà été réalisé et a donné de bons résultats pour des mesures au niveau du sol) (La-1) ;
- augmenter le rendement en utilisant des détecteurs de surface plus grande.

-:-:-:-:-:-

# CHAPITRE II

## ETUDE SUR MODELE NUMERIQUE DE L'EQUILIBRE RADIOACTIF

Avant d'aborder l'étude expérimentale du radon et de ses descendants, j'ai tenté de clarifier le problème en étudiant sur modèle numérique l'influence de divers paramètres. Le modèle envisagé se propose d'indiquer en tout point d'une mine schématisée les valeurs des fractions d'équilibre $f_A$, $f_B$, $f_C$ et de l'E$\alpha$t en fonction des valeurs moyennes des concentrations en radon dans les galeries et les chantiers, les débits moyens de ventilation, et les longueurs des galeries, dépilages et montages (Ch-1). Je décrirai d'abord les principes de bases nécessaires à cette étude et j'aborderai ensuite l'étude par simulation.

### I. PRINCIPES DE BASE

Pour traiter ce problème, j'ai schématisé une mine d'uranium et admis que les phénomènes étudiés pouvaient être décrits à l'aide de quatre opérations simples (galerie, confluence, dérivation, source de radon). L'ensemble de la mine ne sera que l'articulation de ces différentes opérations appelées dans l'ordre de la configuration topographique. Ces opérations constituent autant de sous-programmes que je décris ci-dessous.

#### I.1 - Galerie

Si on suppose que le courant d'air chargé en radon et en produits de désintégration RaA, RaB, RaC circule à vitesse constante dans la galerie, l'évolution des concentrations $Q_R$, $Q_A$, $Q_B$, $Q_C$ sera fonction :

- du temps de séjour de l'air dans cette galerie (équations de désintégration classiques) ;
- du dépôt des descendants solides sur les parois (un terme correctif peut rendre compte des pertes par impact, sédimentation ou diffusion des noyaux de RaA, RaB, RaC') ;
- du dégagement du radon des parois et de l'eau.

Les variations des concentrations en radon ne sont dues qu'aux conditions de ventilation, de pression (Po-1, Po-2) et d'exploitation de la mine (tir, forage, raclage...). En première approximation, j'ai admis que les pertes de radon par désintégration sont compensées par l'apport dû au dégagement des parois dans la plupart des galeries considérées (As-1). Ce point devra être vérifié expérimentalement.

Les équations de départ sont donc :

$$\frac{dQ_A}{dt} = \lambda_R Q_R - \lambda_A Q_A$$

$$\frac{dQ_B}{dt} = \lambda_A Q_A - \lambda_B Q_B$$

$$\frac{dQ_C}{dt} = \lambda_B Q_B - \lambda_C Q_C$$

On utilise les conditions initiales pour résoudre ces équations :

Pour t = 0 :

$$f_A = f_{OA} \rightarrow Q_A = Q_{OA} = f_{OA}\, Q_{OR} \frac{\lambda_R}{\lambda_A}$$

$$f_B = f_{OB} \rightarrow Q_B = Q_{OB} = f_{OB}\, Q_{OR} \frac{\lambda_R}{\lambda_B}$$

$$f_C = f_{OC} \rightarrow Q_C = Q_{OC} = f_{OC}\, Q_{OR} \frac{\lambda_R}{\lambda_C}$$

Il vient :

$$Q_A = (Q_{OA} - \frac{\lambda_R}{\lambda_A} Q_{OR})\, e^{-\lambda_A t} + \frac{\lambda_R}{\lambda_A} Q_{OR}$$

$$Q_B = (Q_{OB} - \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} Q_{OA} + \frac{\lambda_R \lambda_A\, Q_{OR}}{\lambda_B(\lambda_B - \lambda_A)})\, e^{-\lambda_B t} + \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} (Q_{OR} - \frac{\lambda_R}{\lambda_A})\, e^{-\lambda_A t} + \frac{\lambda_R}{\lambda_B} Q_{OR}$$

$$Q_C = (Q_{OC} - \frac{\lambda_B}{\lambda_C - \lambda_B} Q_{OB} + \frac{\lambda_A \lambda_B\, Q_{OA}}{(\lambda_C - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{\lambda_A \lambda_B \lambda_R\, Q_{OR}}{\lambda_C(\lambda_C - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_B)})\, e^{-\lambda_C t} + (\frac{\lambda_B Q_{OB}}{\lambda_C - \lambda_B}$$

$$- \frac{\lambda_A \lambda_B\, Q_{OA}}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{\lambda_A \lambda_R\, Q_{OR}}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_B)})\, e^{-\lambda_B t} + (\frac{\lambda_B \lambda_A\, Q_{OA}}{(\lambda_C - \lambda_A)(\lambda_B - \lambda_A)} - \frac{\lambda_B \lambda_R\, Q_{OR}}{(\lambda_C - \lambda_A)(\lambda_B - \lambda_A)})\, e^{-\lambda_A t}$$

$$+ \frac{\lambda_R}{\lambda_C} Q_{OR}$$

d'où l'on tire les valeurs :

$$f_A = \frac{\lambda_A Q_A}{\lambda_R Q_R}$$

$$f_B = \frac{\lambda_B Q_B}{\lambda_R Q_R}$$

$$f_C = \frac{\lambda_C Q_C}{\lambda_R Q_R}$$

J'ai tracé les courbes d'évolution dans le temps des fractions d'équilibre $f_a$, $f_B$, $f_C$ :

- dans une atmosphère ne contenant que du radon au temps t = 0 (figure 12A) ;
- dans une atmosphère où les fractions d'équilibre ont pour valeur :

$f_{0A} = 0,50$ ; $f_{0B} = 0,30$ ; $f_{0C} = 0,20$ (figure 12 B)

On note que dans les deux cas $f_A = 1$ au bout de 20 minutes, tandis que $f_B$ et $f_C$ n'atteignent l'unité que pour des temps supérieurs à 1 heure.

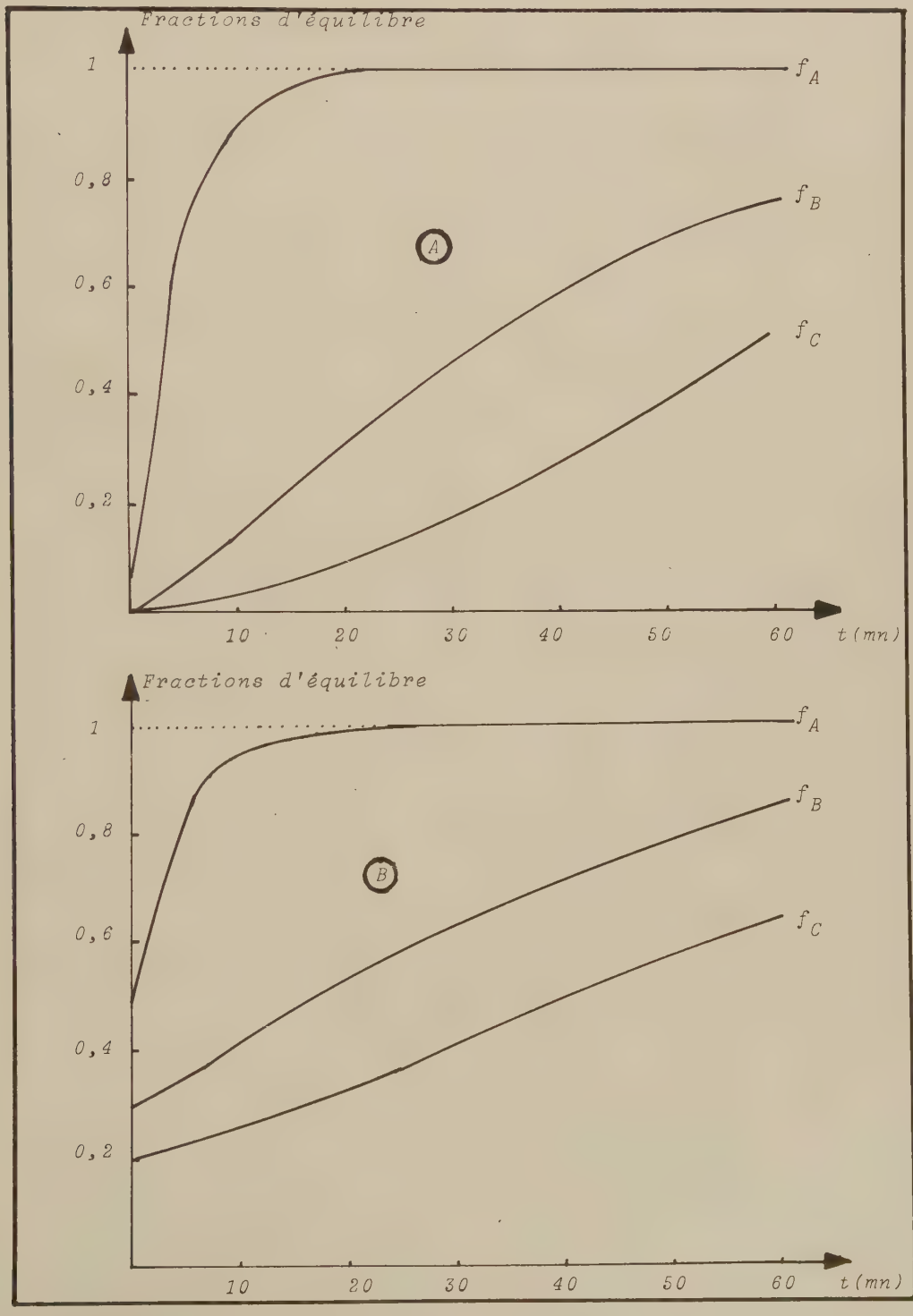
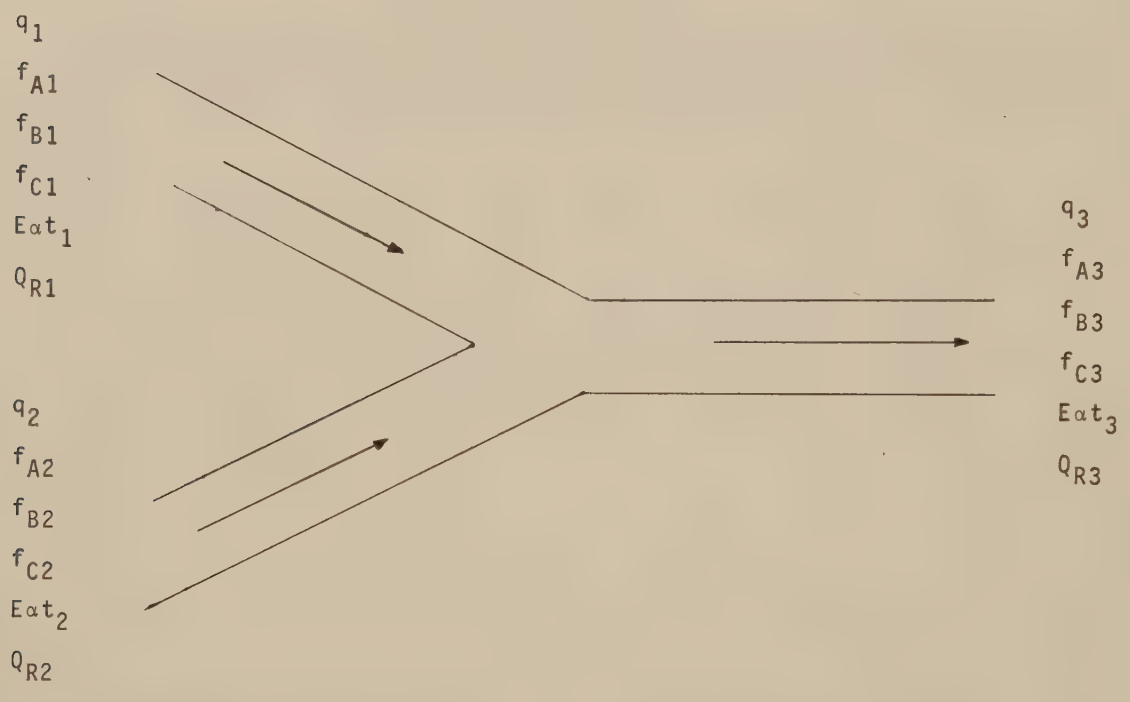



*FIGURE 12 : Evolution en fonction du temps des fractions d'équilibre dans une galerie pour les conditions initiales :*
$f_{AO} = f_{BO} = f_{CO} = 0$ ; (A) $f_{AO} = 0,50$ $f_{BO} = 0,30$ $f_{CO} = 0,20$ (B).

I.2 - Confluence

C'est le nom que je donne à deux galeries qui se rejoignent pour n'en former plus qu'une. Les sections étant approximativement les mêmes, les débits de ventilation ($q$) s'ajoutent.




En première approximation on pourra écrire :

$$q_3 = q_1 + q_2$$

$$Q_{R3} = \frac{q_1 Q_{R1} + q_2 Q_{R2}}{q_1 + q_2}$$

$$E\alpha t_3 = \frac{q_1 E\alpha t_1 + q_2 E\alpha t_2}{q_1 + q_2}$$

$$f_{A3} = \frac{q_1 Q_{R1} f_{A1} + q_2 QR_2 f_{A2}}{q_1 Q_{R1} + q_2 Q_{R2}}$$

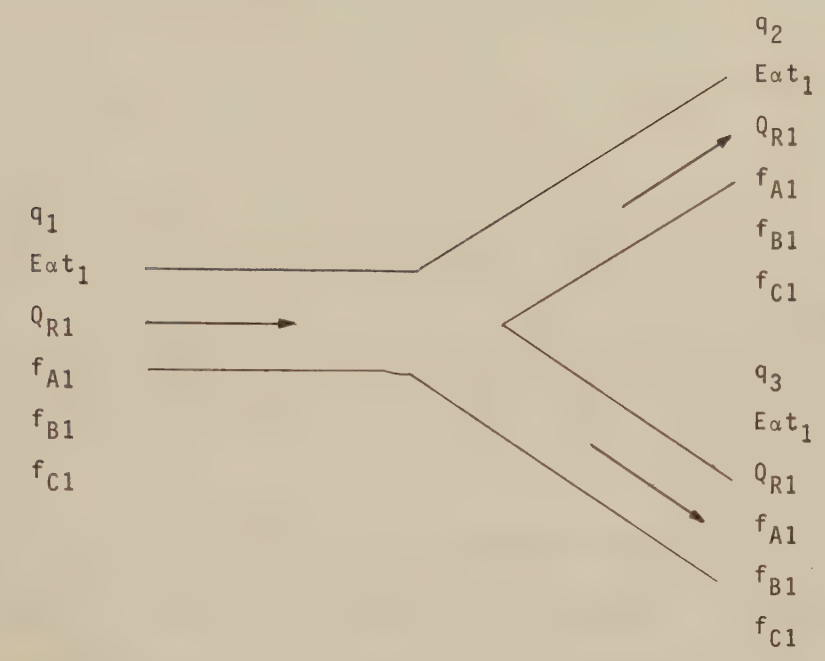
$$f_{B3} = \ldots\ldots\ldots$$

$$f_{C3} = \ldots\ldots\ldots \text{ etc} \ldots\ldots\ldots$$

I.3 - Dérivation

Les valeurs des concentrations en radon et des fractions d'équilibre restent inchangées dans une dérivation. Seules les valeurs du débit, donc de la vitesse de l'air, se modifient.

La dérivation est l'opération schématisée ci-dessous :




1.4 - Source de radon

La plupart des galeries ne contribuent que faiblement à la génération du radon : elles sont généralement tracées en stérile. Il est alors possible de localiser les sources de radon dans les dépilages, les recoupes actives et les travers-banc. Dans une mine donnée chaque endroit contribuant à une augmentation sensible de l'activité en radon sera pris comme point source. Le relevé des différents points sources est facilité par la surveillance quotidienne de la teneur en radon par les services de protection (environ 40 000 mesures par an).

Le fait de considérer les sources de radon comme ponctuelles est une simplification acceptable, compte tenu de la précision avec laquelle sont déterminées les concentrations en radon (± 15 %) dans les galeries et de la difficulté de chiffrer le dégagement des parois.

L'influence théorique d'une source de radon supposée ponctuelle, se traduit par les équations :

$$Q_{R2} = Q_{R1} + Q_{RS}$$

$$f_{A2} = f_{A1} \times Q_{R1}/Q_{R2}$$

$$f_{B2} = f_{B1} \times Q_{R1}/Q_{R2}$$

$$f_{C2} = f_{C1} \times Q_{R1}/Q_{R2}$$

$$E\alpha t_2 = E\alpha t_1$$

*Les indices S, 1, 2 sont relatifs respectivement à la source et aux conditions existant avant et après cette source.*

Pour une source de radon donnée dégageant $Q_{OR}$ atomes par unité de temps, tout changement de ventilation se traduit par une variation de la concentration inversement proportionnelle au débit.

## II. ETUDE PAR SIMULATION

### II.1 Mine théorique

J'ai bâti une mine totalement théorique (Figure 13) comprenant :

- trois niveaux ;
- deux axes de retour d'air généraux (dépilages ou montages) ;
- six entrées d'air (A,B...F). Cet air peut provenir du puits central : il est alors très faiblement pollué. Il peut aussi provenir de chantiers et dans ce cas contenir une forte teneur en radon.

Les valeurs numériques utilisées dans le modèle (longueur des galeries, hauteur des dépilages et montages... etc) ont été choisies de manière à être adaptées aux conditions rencontrées fréquemment dans les mines d'uranium. A l'aide de ce modèle

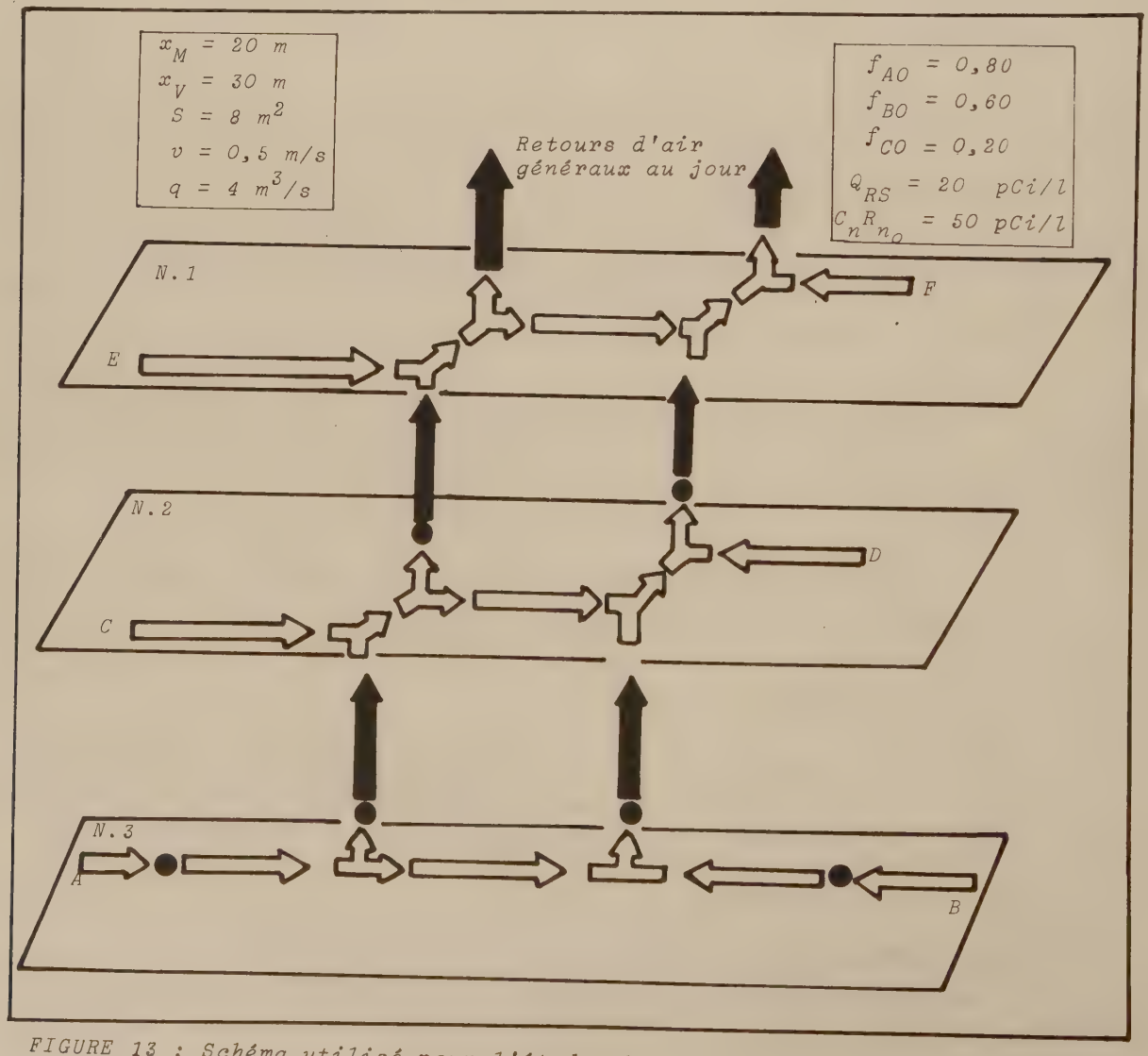



*FIGURE 13 : Schéma utilisé pour l'étude théorique par simulation.*

j'ai étudié l'influence :

- du débit de ventilation ;
- de l'augmentation de longueur d'une galerie ;
- des sources de radon ;

sur l'état d'équilibre entre le radon et ses descendants.

II.2 - Influence de la ventilation

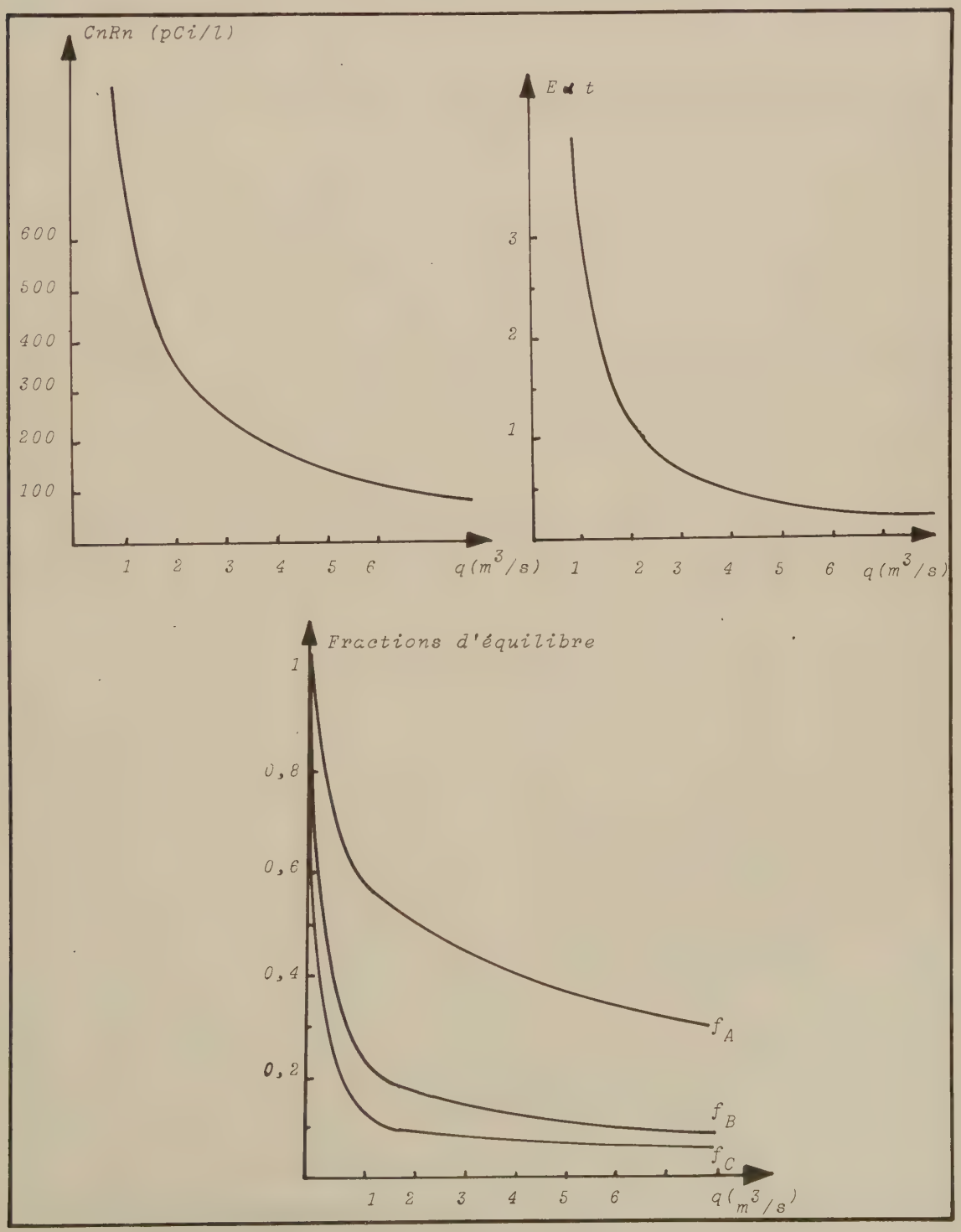



*FIGURE 14 : Influence de la ventilation sur l'équilibre, la concentration en radon, l'E ∝ t.*

Lorsque le débit augmente, $f_A$, $f_B$, $f_C$, l'Eαt diminuent rapidement. On constate cependant qu'à partir d'un certain débit de ventilation,l'augmentation de la ventilation n'est plus justifiée car les valeurs de l'Eαt et des fractions d'équilibre ont une décroissance beaucoup plus lente (figure 14) (Wr-1).

II.3 - Influence de la longueur d'une galerie

Le long de la galerie étudiée, les valeurs des $f_A$, $f_B$, $f_C$ augmentent. Cependant, l'augmentation de la longueur d'une galerie ne produit un accroissement du danger que dans un proche voisinage (cas B). L'influence au retour d'air général (qui se situe assez loin) (cas A) est presque nulle (figure 15).

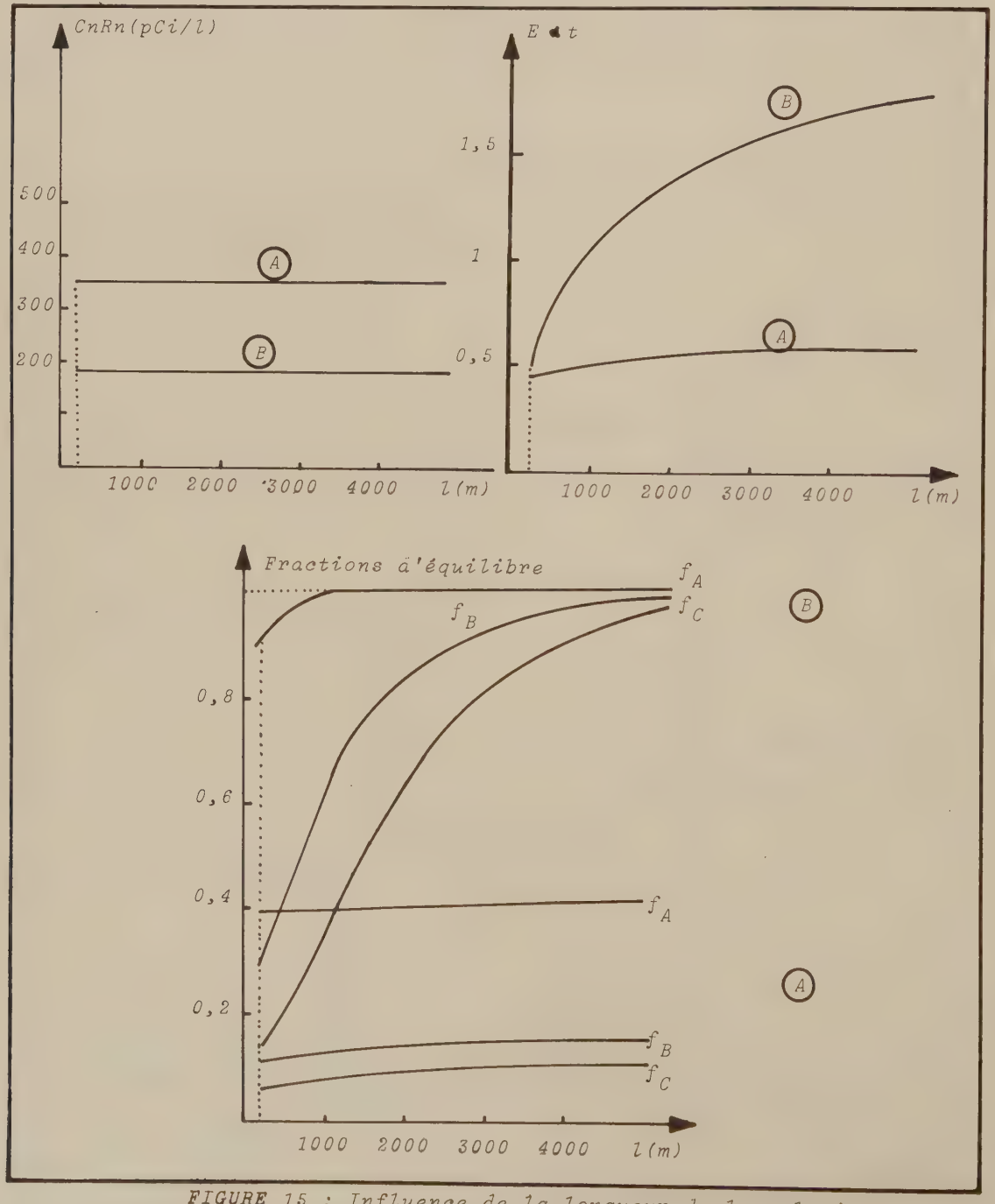



*FIGURE 15 : Influence de la longueur de la galerie :*
*- au retour d'air général (A)*
*- à la fin de cette même galerie (B);*
*sur l'état de l'équilibre radioactif, l'E α t et la concentration en radon.*

II.4 - Influence des sources de radon

Le danger d'irradiation représenté par l'Eαt n'augmente que faiblement lorsque la teneur de la source en radon croit. En effet, d'une part la génération des descendants RaA, B et C n'est pas immédiate ; d'autre part l'élévation de la concentration en radon provoquée par la source entraîne un fort déséquilibre des fractions d'équilibre. La figure 16 indique l'influence théorique d'une source de radon. En réalité l'augmentation de la concentration en radon n'est pas instantanée et la chute des valeurs de $f_A$, $f_B$, $f_C$ n'est pas aussi brusque ( les valeurs en pointillé se rapprochent plus de la réalité).

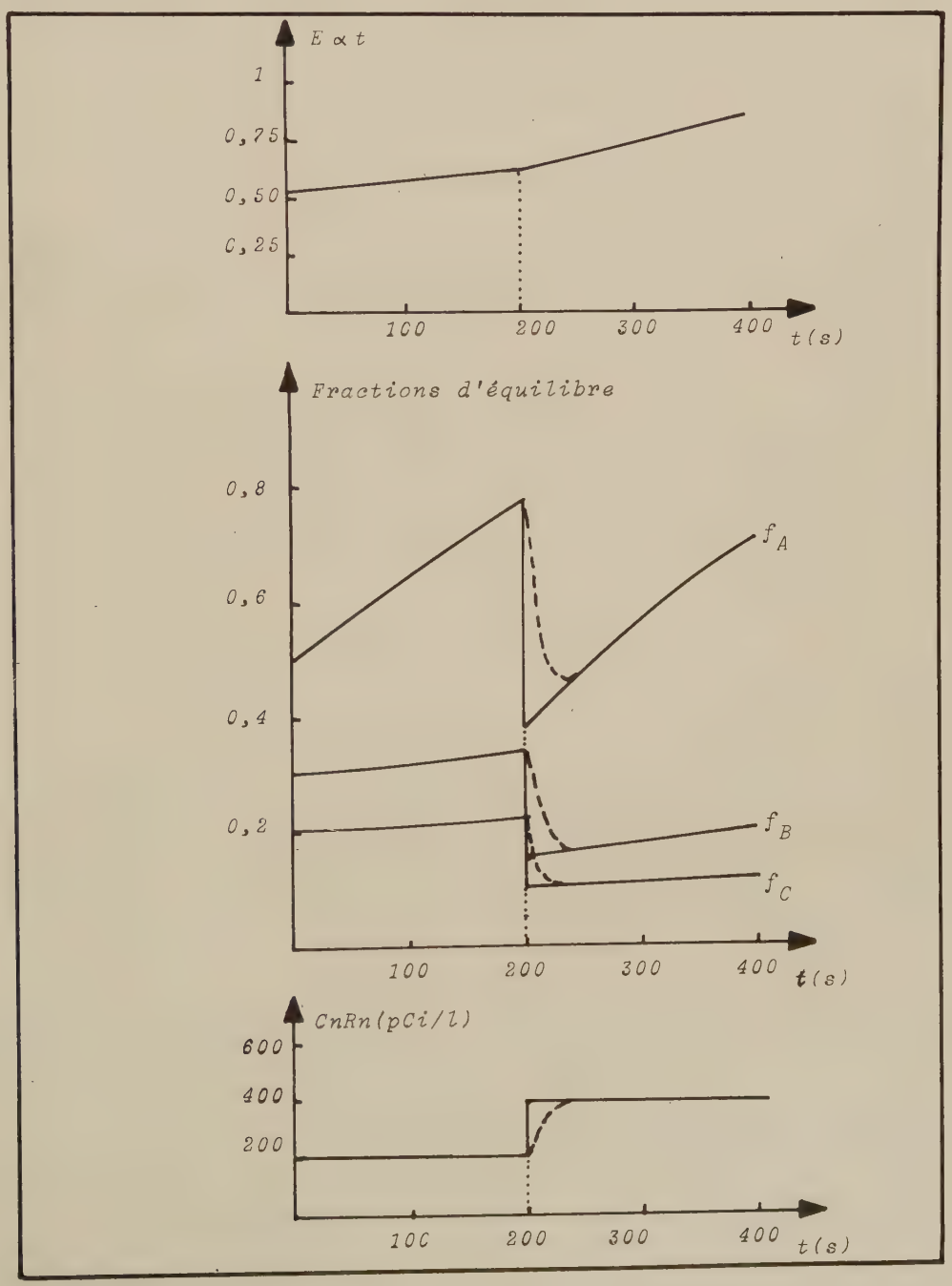



*FIGURE 16 : Influence d'une source de radon (200 pCi/l) sur l'état de l'équilibre radioactif et sur l'E α t.*

# CHAPITRE III

## RESULTATS EXPERIMENTAUX

Schématiquement, les 500 mesures expérimentales peuvent être divisées en deux groupes :

- les chantiers (environ 220) :
- les galeries (c'est-à-dire tout ce qui n'est pas chantier 280).

Seul un souci d'équilibre numérique entre les chantiers et les galeries m'a guidé dans le choix des lieux expérimentaux.

### I. LE RADON

#### I.1 - Ensemble des résultats

L'histogramme 1 de la figure 17 donne la répartition de la concentration en radon pour les 500 points de mesure. L'intervalle de concentration le plus fréquent (26%) est 100 - 200 pCi/l. Environ 10 % des concentrations observées sont inférieures à 100 pCi/l, et moins de 3 % sont supérieures à 1500 pCi/l. Cela montre que les endroits faiblement ventilés (où le radon s'accumule) sont peu nombreux.

Les histogrammes 2 et 3 donnent la distribution en fréquence de la concentration en radon pour les 220 chantiers et les 280 galeries. On note une légère différence entre les deux distributions :

- pour les chantiers environ 79 % des concentrations en radon sont inférieures à 500 pCi/l ;
- pour les galeries la valeur de la fréquence n'est que de 68%.

Cela peut provenir du fait que les chantiers sont en général mieux ventilés que les galeries. Il y a aussi le fait que je comptabilise dans les 280 galeries quelques vieux travaux (20 environ) non ventilés et de forte teneur en radon.

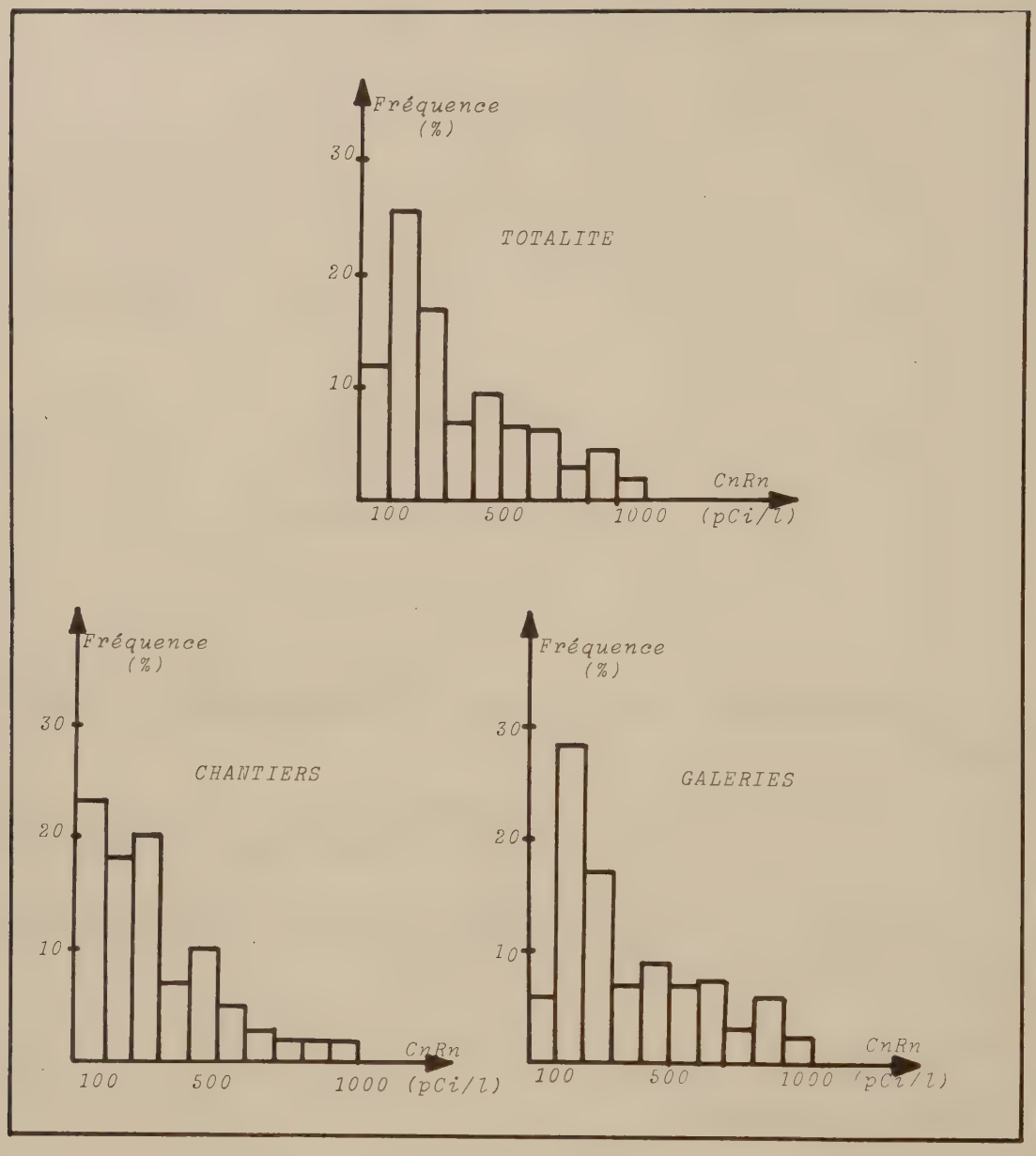



*FIGURE 17: Histogrammes de répartition des concentrations en radon*

## I.2 - Variations de la concentration en radon

### *I.2.A. - Avec le temps*

Des mesures continues de la concentration en radon par la méthode de la chambre de désintégration ont été menées nuit et jour pendant environ 2 mois (en 4 périodes fractionnées de 15 jours). Ces manipulations ont été faites au labo STEP, situé au niveau 120 de la mine de Fanay dans la galerie G 8bis (figure 18). Le circuit d'aérage normal correspondant à ce secteur de mine et aux conditions existant au moment des expérimentations est donné sur cette figure. L'air frais provenant du jour est prélevé par un ventilateur de 4 CV situé dans la G 680. Après avoir ventilé le chantier D 638 (dépilage 638) et traversé les montages M 636, M 582, M 438 et quelques trajets indéterminés ("?" dans le plan) il arrive dans la galerie G 8bis chargé en radon. Une étude du temps de trajet à été faite en juin 1970. Une bombe

fumigène générant quelques $10^6$ noyaux par $cm^3$ pendant plusieurs minutes a été allumée au point A de la galerie G 680 (figure 18). L'arrivée d'une "bouffée de noyaux" a été observée, 25 minutes environ après l'allumage, au labo STEP.

D'autre part lorsque le chantier D 638 est en activité, des maxima de concentration, correspondant à des tirs effectués à ce chantier, ont été détectés au N 120 en moyenne 25 à 30 minutes après le déclenchement du tir.

Pendant les périodes d'activité minière (5h-13h, 13h-21h) le sens de ventilation est celui indiqué sur la figure 18. La ventilation primaire est stoppée entre 21h et 5h mais certains ventilateurs secondaires peuvent rester en marche pendant cette période ; trois cas sont alors possibles au labo STEP :

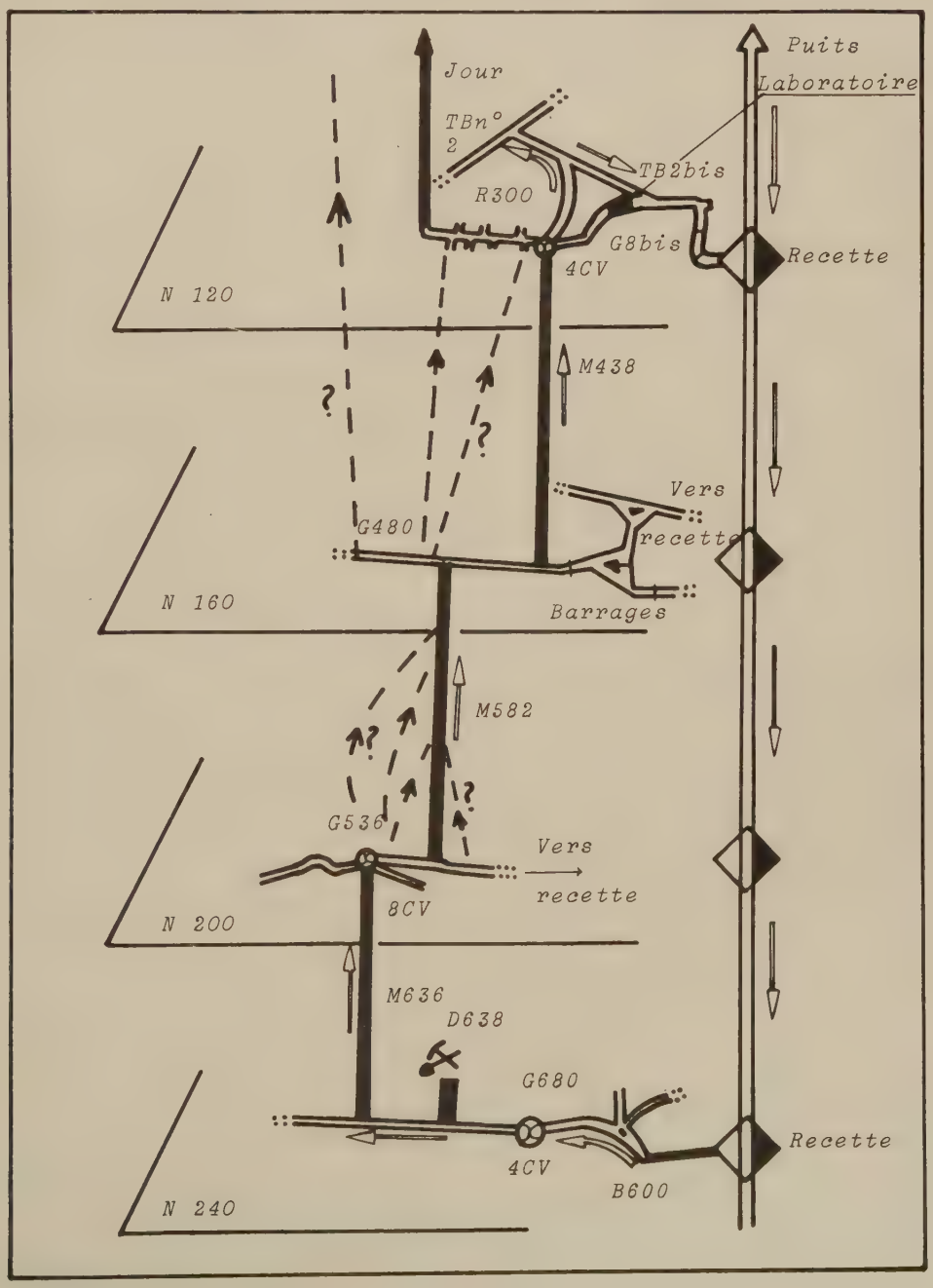
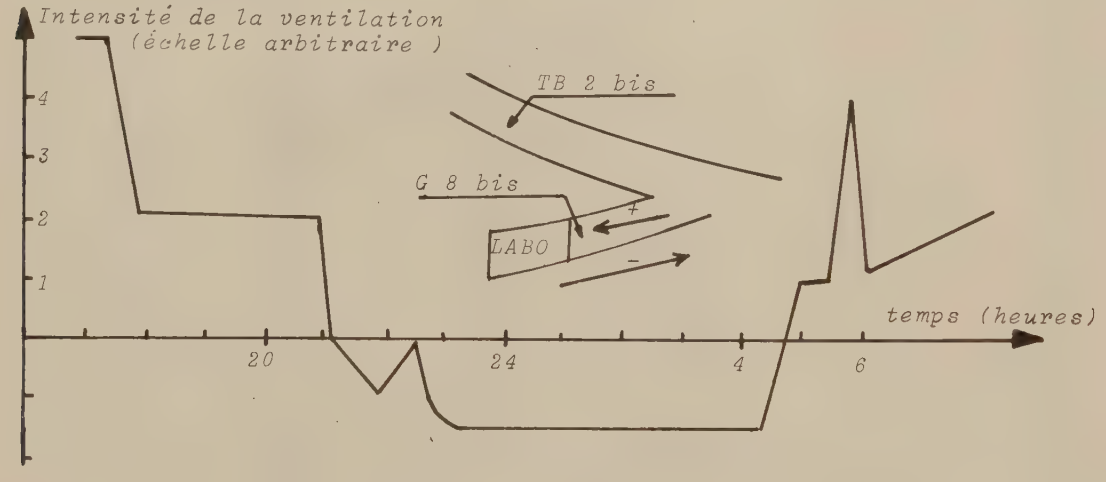



*FIGURE 18 : Représentation schématique du circuit d'aérage du "Labo S.T.E.P." de la mine de Fanay.*

- maintien du sens de ventilation diurne;
- inversion du sens de ventilation (l'air peut alors provenir du jour directement) ;
- état stationnaire.

Chacun de ces cas a été observé au labo STEP. Le cas le plus intéressant est constitué par l'inversion de la ventilation ; cela s'est produit dans la nuit du 19 au 20 mars (figure 19). Il y a établissement très net d'une ventilation inverse entre 21h et 5h correspondant à une chute brusque de la concentration en radon (d'un facteur 10 environ). Cela confirme un apport d'air frais extérieur.

Une variation de la concentration en radon couvrant une période de 3 jours (16/03/70 au 20/03/70) est donnée sur la figure 20 A. (Le chantier du D 638 n'est pas en activité). Si nous ne tenons compte que des périodes de travail, les valeurs extrê-



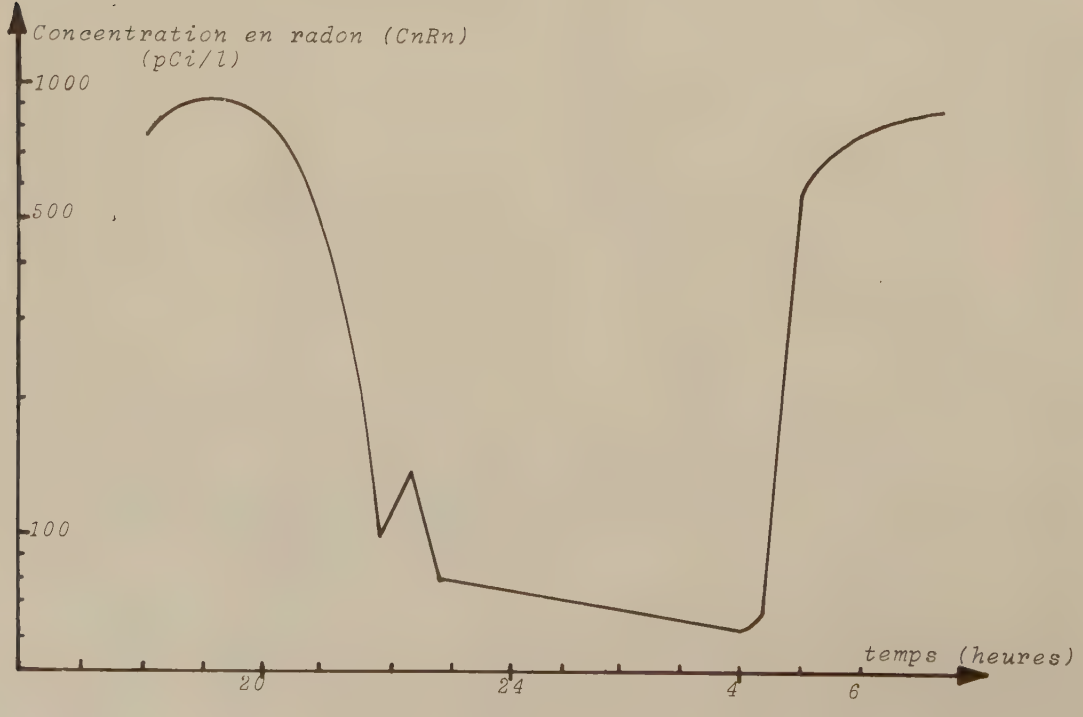




*FIGURE 19 : Variations de l'intensité de la ventilation et de la concentration en radon au "labo STEP".*

mes sont 800 et 1200 pCi/l, ce qui montre une assez bonne stabilité de la concentration moyenne.

Mais en période d'activité du chantier D 638, les variations sont bien plus accentuées et plus rapides (Figure 20B). Les valeurs extrêmes sont alors 1100 et 2500 pCi/l.

Des mesures ont aussi été faites dans un chantier (à l'aide de ballons scintillants). De très importantes variations de concentration en radon ont été observées suivant les activités minières et aussi pendant celles-ci. C'est un argument de plus pour les méthodes de l'équilibre radon-descendants utilisant des prélèvements courts (spectrométrie par exemple).

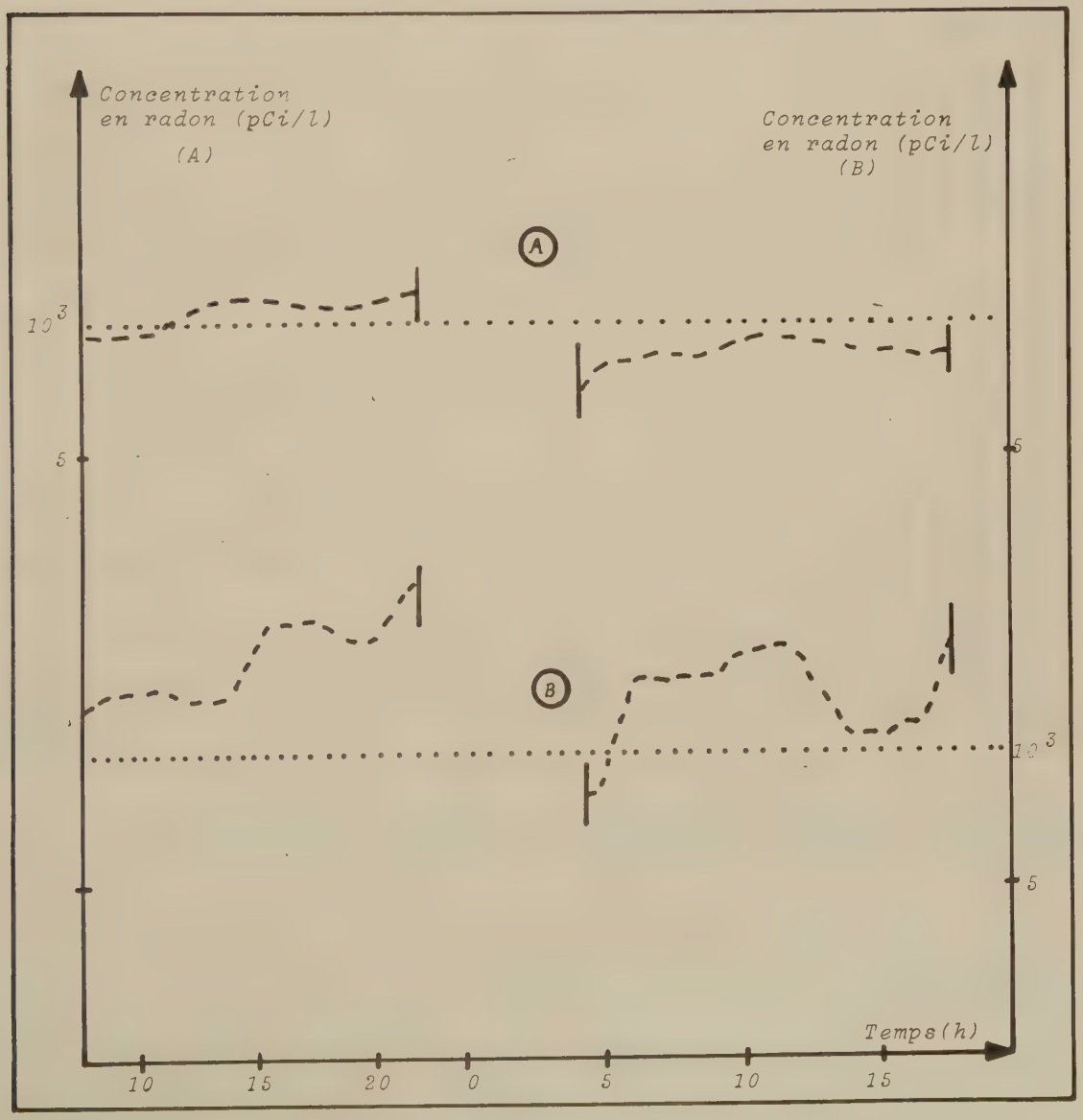



*FIGURE 20: Courbes de variation de la concentration en radon en fonction du temps au "labo STEP" : A inactivité du chantier B chantier en activité*

I.2.B - Variation de la concentration en radon avec la distance

Deux galeries intéressantes pour leur longueur et leur situation ont été choisies pour une étude systématique de la concentration en radon ; il s'agit de la galerie L 412, B 412 à Margnac et de la galerie L 505, B 560 à Fanay. Ces galeries ne participent que faiblement à l'augmentation de la concentration en radon (moins de 1 pCi/l). Les variations de la teneur en radon avec la distance sont données sur la figure 21. On note que la teneur reste à peu près constante sur toute la distance pour les deux galeries. Cela confirme le fait que la plupart des galeries tracées en stérile ne contribuent pas à l'augmentation des concentrations en radon.

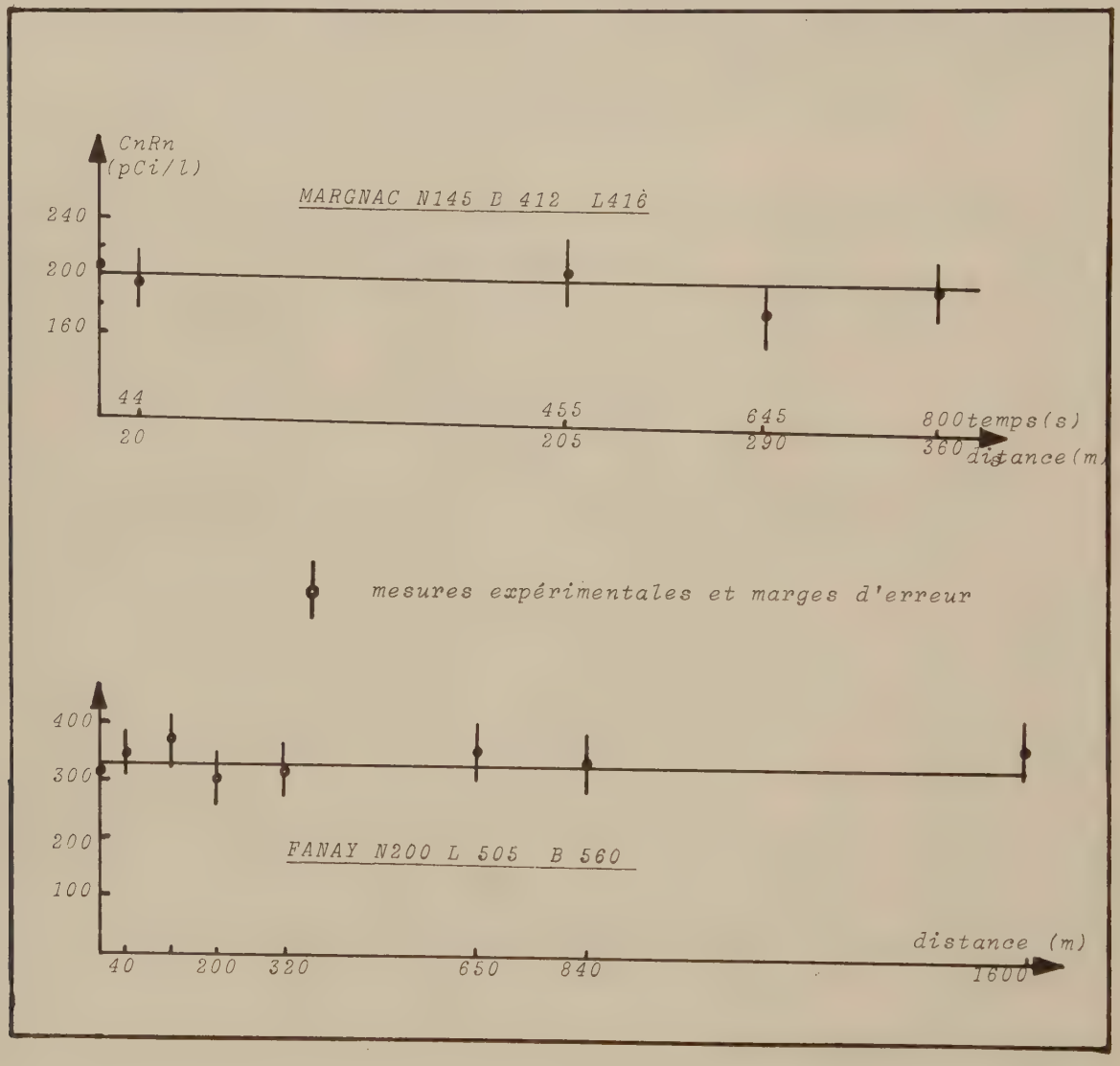



FIGURE 21: Variation de la concentration en radon avec la distance

I.3 - Discussion

Les mesures expérimentales sur le radon apportent plusieurs indications. Tout d'abord confirmation de certaines hypothèses faites dans le modèle à savoir que les pertes de radon dans les galeries sont compensées par un faible dégagement des parois (cela était prévisible car une des mesures pratiques pour limiter le dégagement du radon était de tracer les galeries en stérile).

Ensuite, que la détermination des sources de radon était relativement facile ; un simple quadrillage bien ordonné de mesures de concentration permettait de localiser et chiffrer ces sources.

Enfin que la teneur moyenne en radon était assez forte (quelques $10^{-10}$ Ci/l) et très souvent à la limite de la (CMA) radon.

## II. DESCENDANTS

### II.1 - Ensemble des résultats

A partir des valeurs de $f_B/f_A$, $f_C/f_A$ et de la concentration en radon, j'ai calculé pour chacune des 500 expériences les concentrations de chacun des descendants (en pCi/l), les valeurs de $f_A$, $f_B$, $f_C$, la valeur du rapport $f_{ABC} = 1/3\ (f_A + f_B + f_C)$ et la valeur de l'énergie $\alpha$ totale (E$\alpha$t en unité de $1{,}3\ 10^5$ MeV). J'ai représenté sous forme d'histogramme, la fréquence d'apparition des différentes valeurs dans chaque gamme.

#### *II.1.A - Activité en RaA, RaB, RaC*

Les figures 22, 23,24 sont relatives aux concentrations de chacun des descendants. Ces concentrations sont comprises entre 20 et 1000 pCi/l avec une fréquence très importante pour les valeurs inférieures à 200 pCi/l.

70 % pour le RaA
77 % pour le RaB
87 % pour le RaC

#### *II.1.B - $f_A$, $f_B$, $f_C$*

Les figures 25,26, 27 représentent $f_A$, $f_B$, $f_C$. Ces rapports sont des indicateurs très fidèles de l'efficacité de la ventilation.

En comparant les valeurs obtenues dans les chantiers et les galeries, on observe (figures 25bc, 26bc, 27bc) que les valeurs de $f_A$, $f_B$, $f_C$ pour les chantiers sont plus faibles que celles obtenues pour les galeries. Plusieurs hypothèses sont possibles :

- le chantier est en général une zone riche en minerai, donc peut être considéré comme une source de radon ; cela entraîne une baisse des fractions d'équilibre ;
- l'air d'aérage d'un chantier est amené à grande vitesse par des canars d'assez faible dimension ($\phi$ = 80 cm). Des pertes en RaA, RaB, RaC peuvent se produire par diffusion turbulente et contribuer ainsi à la baisse des valeurs de $f_A$, $f_B$, $f_C$ observée.

Les valeurs extrêmes de $f_A$, $f_B$, $f_C$ sont 1,00 ; 0,73 ; 0,43 et 0,08 ; 0,04 ; 0,02. La valeur moyenne pour les 500 expériences est 0,50 ; 0,30 ; 0,15. Des valeurs de $f_A$ supérieures à 1 ont été observées ; cela peut s'expliquer par une baisse de la

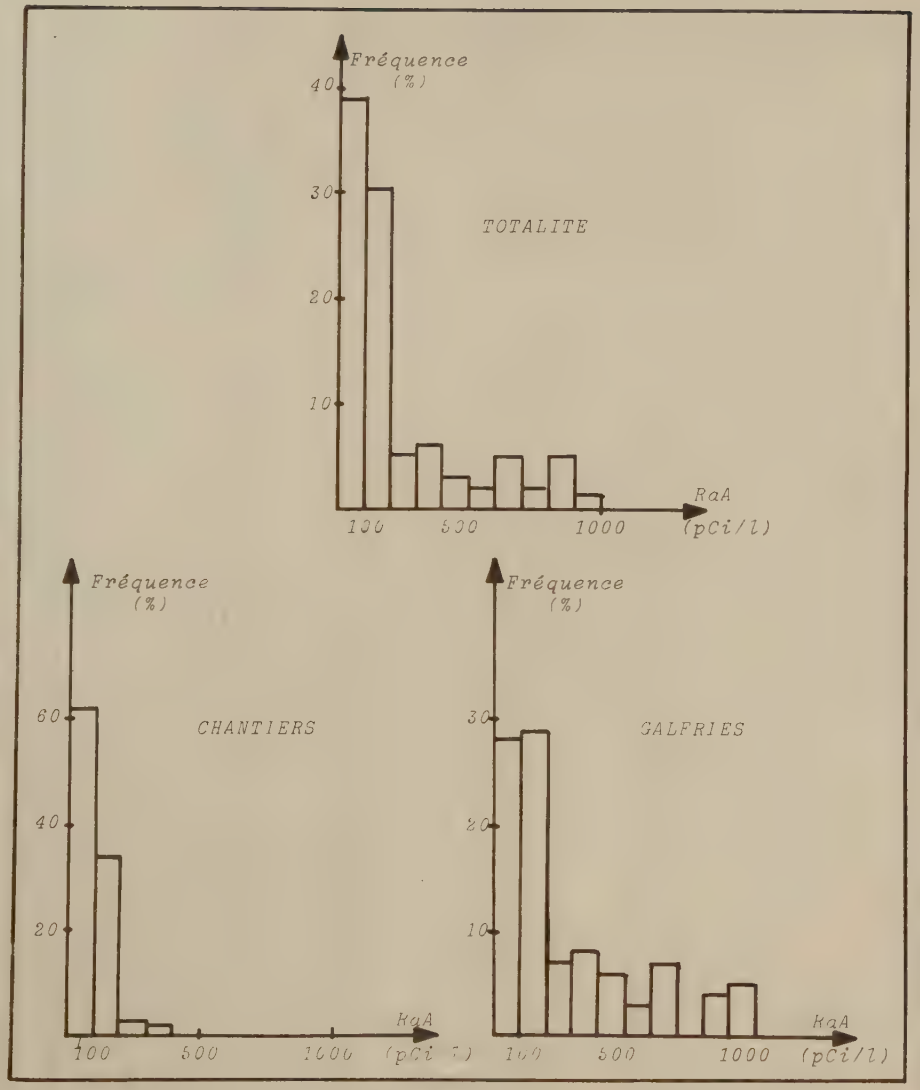



FIGURE 22 :Histogrammes de répartition des concentrations en RaA

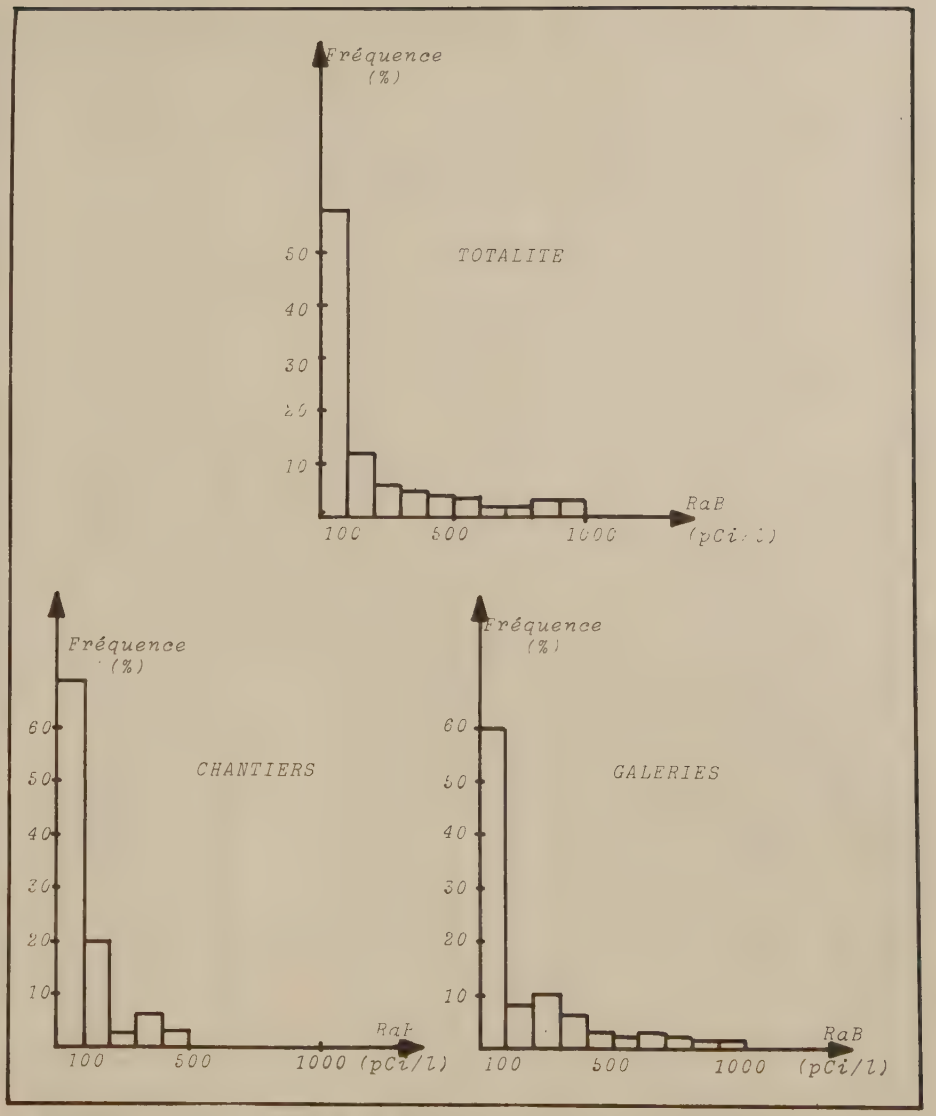



FIGURE 23 :Histogrammes de répartition des concentrations en RaB

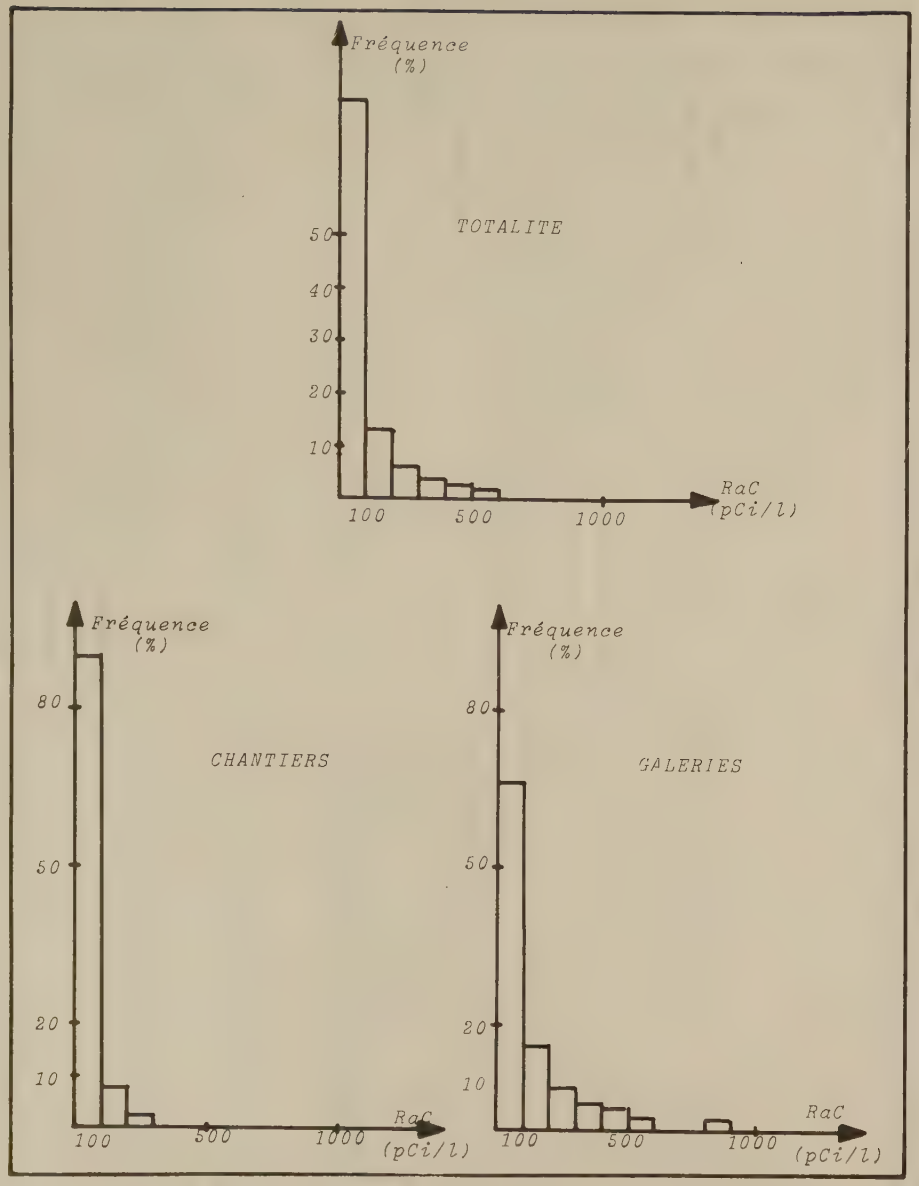



FIGURE 24 : Histogrammes derépartition des concentrations en RaC

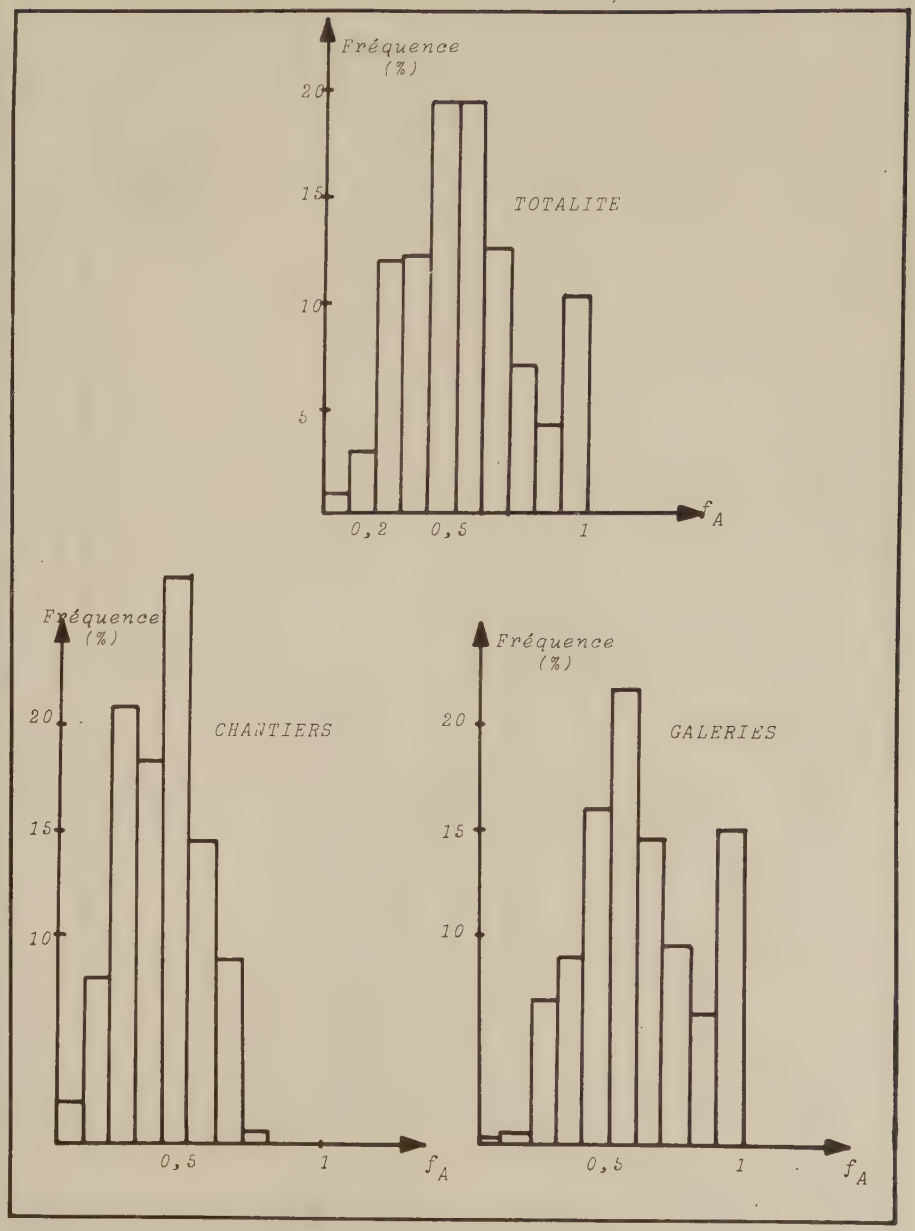



FIGURE 25 : Histogrammes de répartition des valeurs de $f_A$

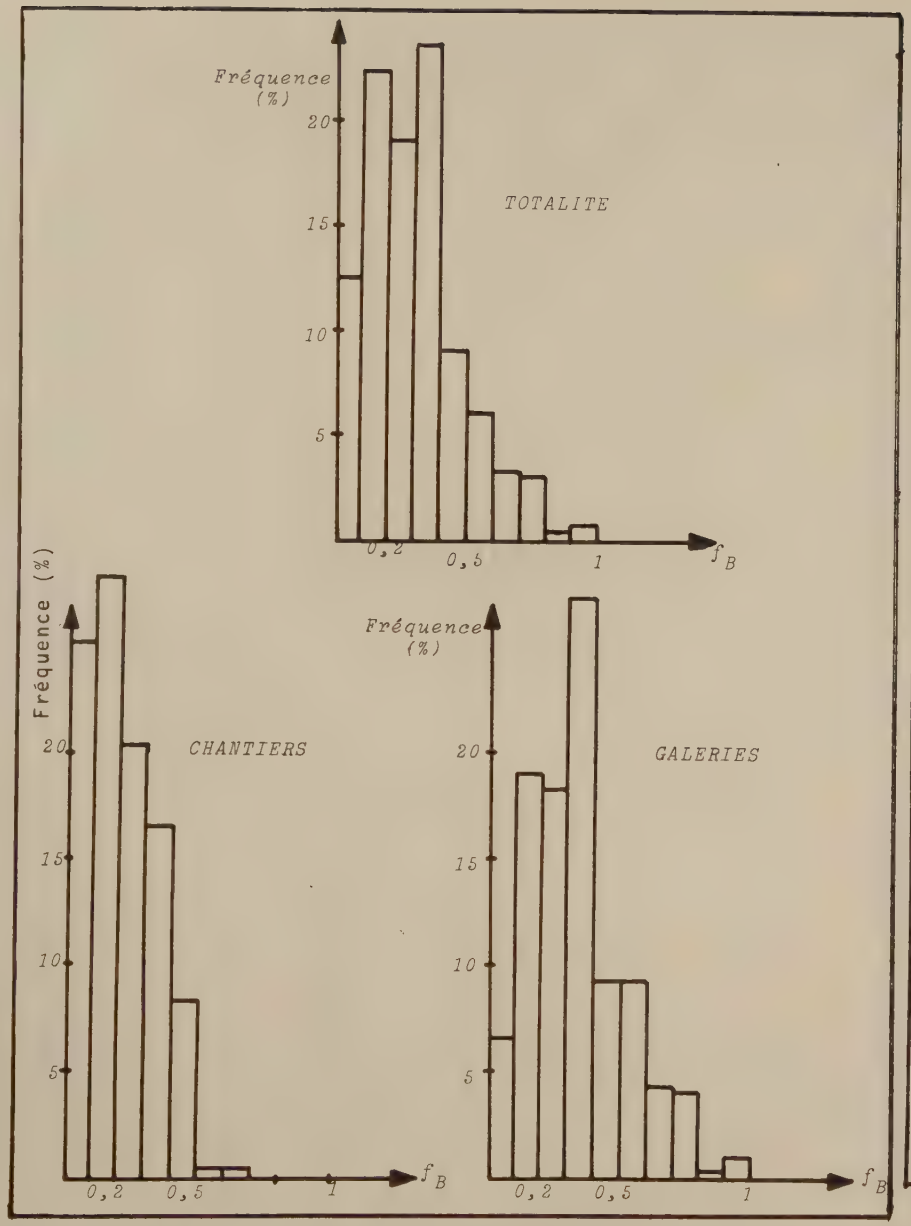



FIGURE 26 : Histogrammes de répartition des valeurs de $f_B$

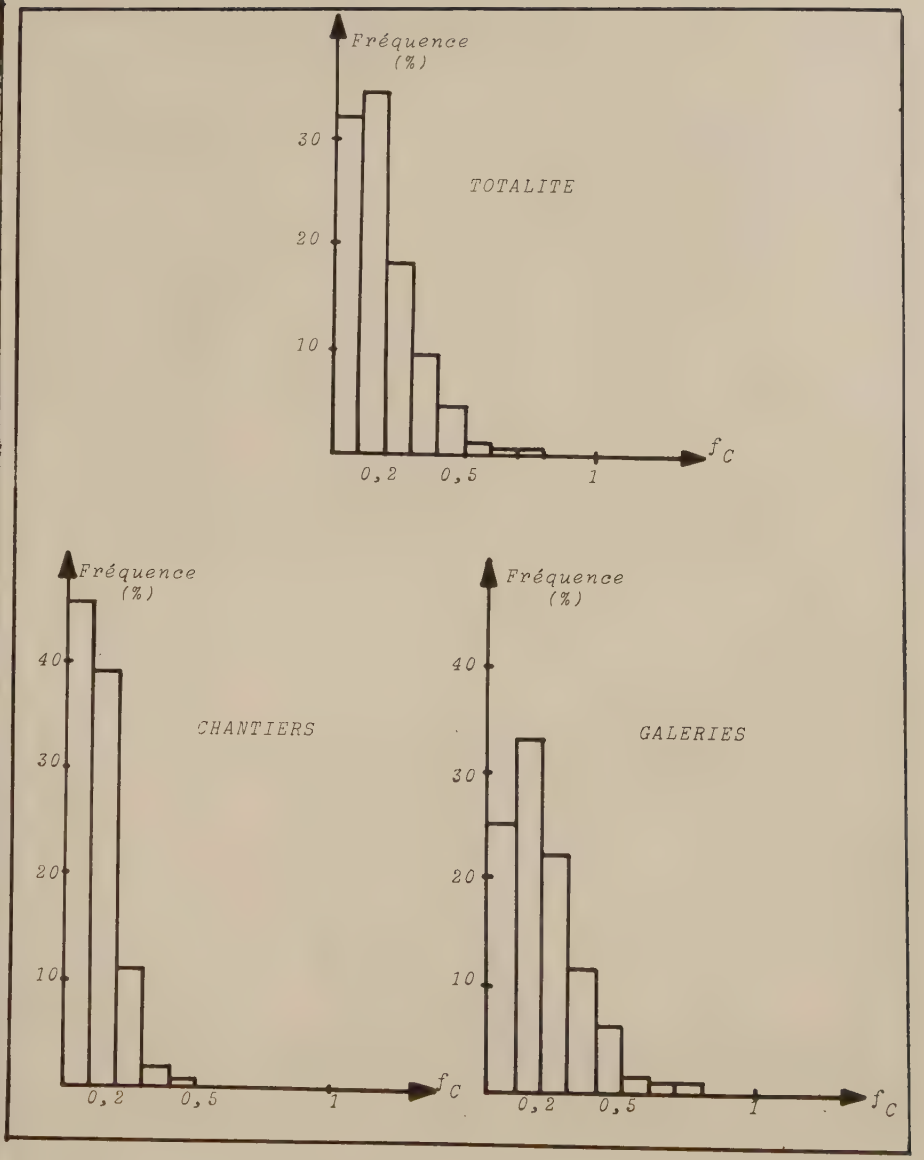



FIGURE 27 :Histogrammes de répartition des valeurs de $f_C$

concentration en radon pendant le prélèvement.

Essayons d'interpréter ces valeurs extrêmes. Si nous ne faisons intervenir aucun apport extérieur, on ne peut expliquer que le cas maximal : 1 ; 0,73 ; 0,43 s'obtient pour un air contenant du radon âgé d'environ 50 à 60 minutes (figure 28). Par contre la valeur la plus fréquente (0,50 ; 0,30 ; 0,15) ne peut s'expliquer simplement. En effet $f_A$ = 0,50 peut être obtenu avec du radon âgé de 3 minutes mais dans ce cas $f_B$ = 0,02 et $f_C$ # 0,001 (figure 28).

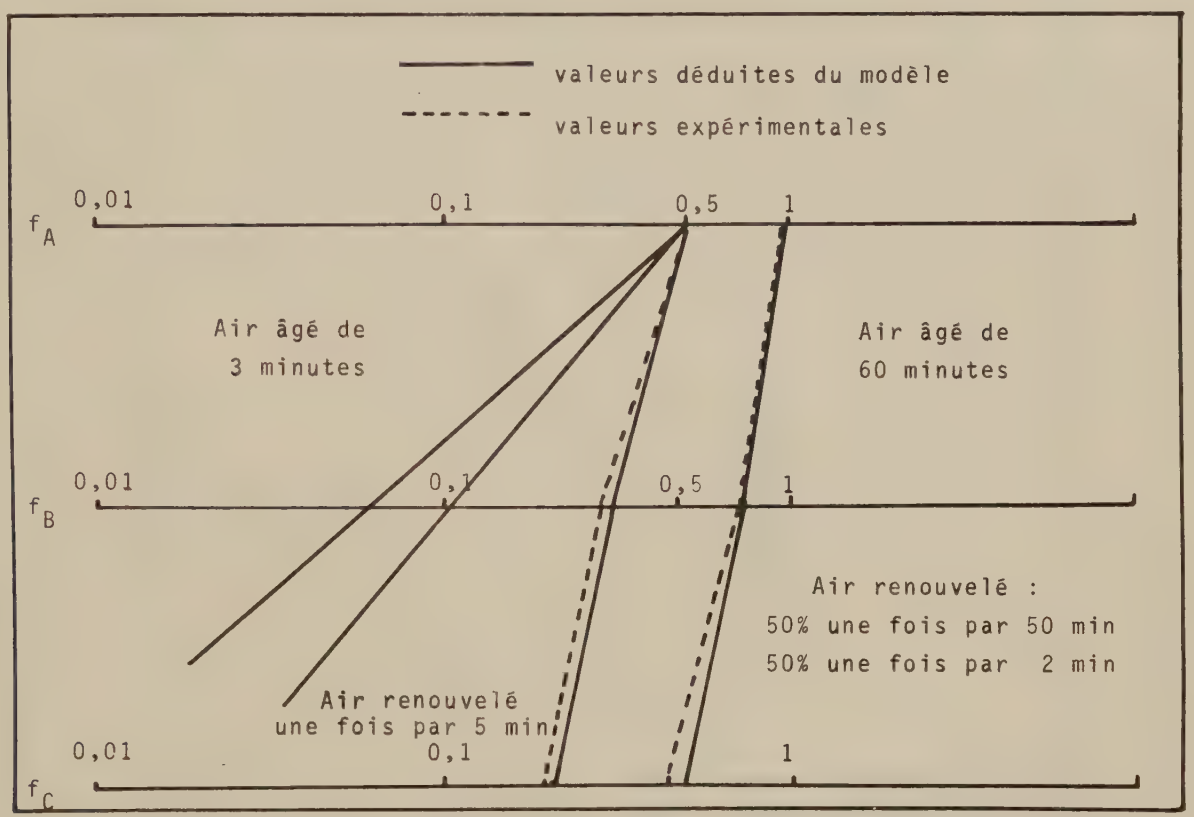



FIGURE 28 : Comparaison des valeurs expérimentales de $f_A$, $f_B$, $f_C$ avec des valeurs déduites de modèles de croissance.

Etudions maintenant la valeur de $f_C$ qui peut fournir des indications très intéressantes sur la provenance du radon. La valeur de $f_C$ correspondant à la plus grande fréquence est 0,15. Il est nécessaire d'avoir un temps de croissance minimal de 30 minutes pour que $f_C$ = 0,15. Dans le cas où $f_C$ = 0,45 (valeur observée avec une fréquence notable de 5%) la limite minimale du temps de croissance est de 60 minutes.

On ne peut donc obtenir d'explications des valeurs expérimentales obtenues que si l'on fait intervenir des mécanismes complexes :

- mélange de deux (ou plusieurs) airs dont les taux de renouvellement sont différents ;
- dépôts des descendants sur les parois par simple diffusion ou diffusion turbulente ;
- etc...

Donnons un exemple : $f_A$ = 0,50 ; $f_B$ = 0,30 ; $f_C$ = 0,15 peut être expliqué par un mélange de deux airs ayant une concentration en radon identique et provenant

de deux endroits de la mine ventilés avec de l'air frais :

- l'un à 0,02 $min^{-1}$
- l'autre à 0,5 $min^{-1}$ (figure 28)

En somme un air dans une mine d'uranium a une histoire de contamination complexe et différente pour chaque lieu.

- Utilisation du modèle numérique

Le modèle numérique défini dans le chapitre II permet de fournir des explications cohérentes aux valeurs expérimentales observées. Pour vérifier son utilisation, nous avons choisi un quartier de la mine de Margnac où des résultats expérimentaux en grand nombre ont été obtenus. La partie intéressante de la mine se compose de 3 niveaux reliés par les dépilages D 460 et D 360 (figure 29). L'air provenant du puits, et relativement peu pollué, arrive aux points B et C. Les valeurs des sources

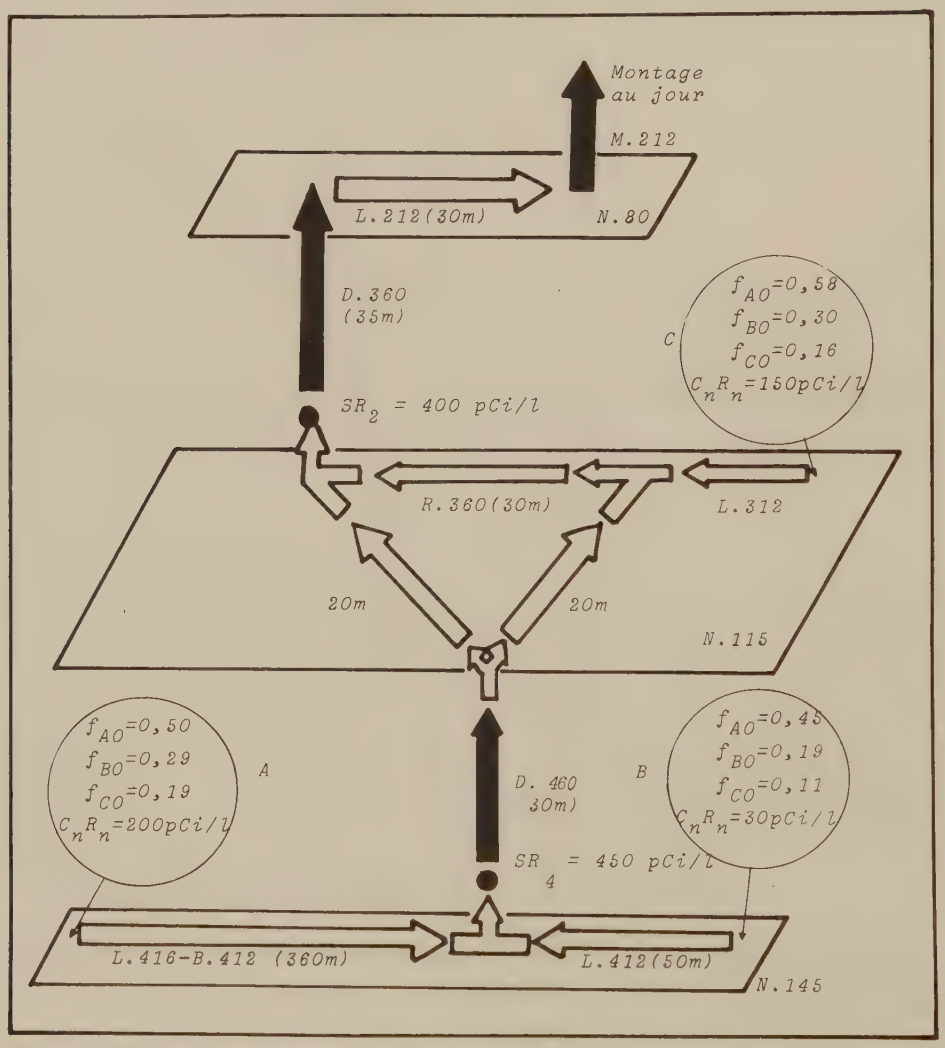



*FIGURE 29 : Représentation schématique des niveaux 145, 115, 80 de Margnac.*

de radon situées principalement à la base du D 460 et D 360, ainsi que les conditions initiales en B et en C ont été déterminées expérimentalement. La figure 30 donne la comparaison entre résultats expérimentaux et théoriques. On note l'assez bonne concordance entre les deux.

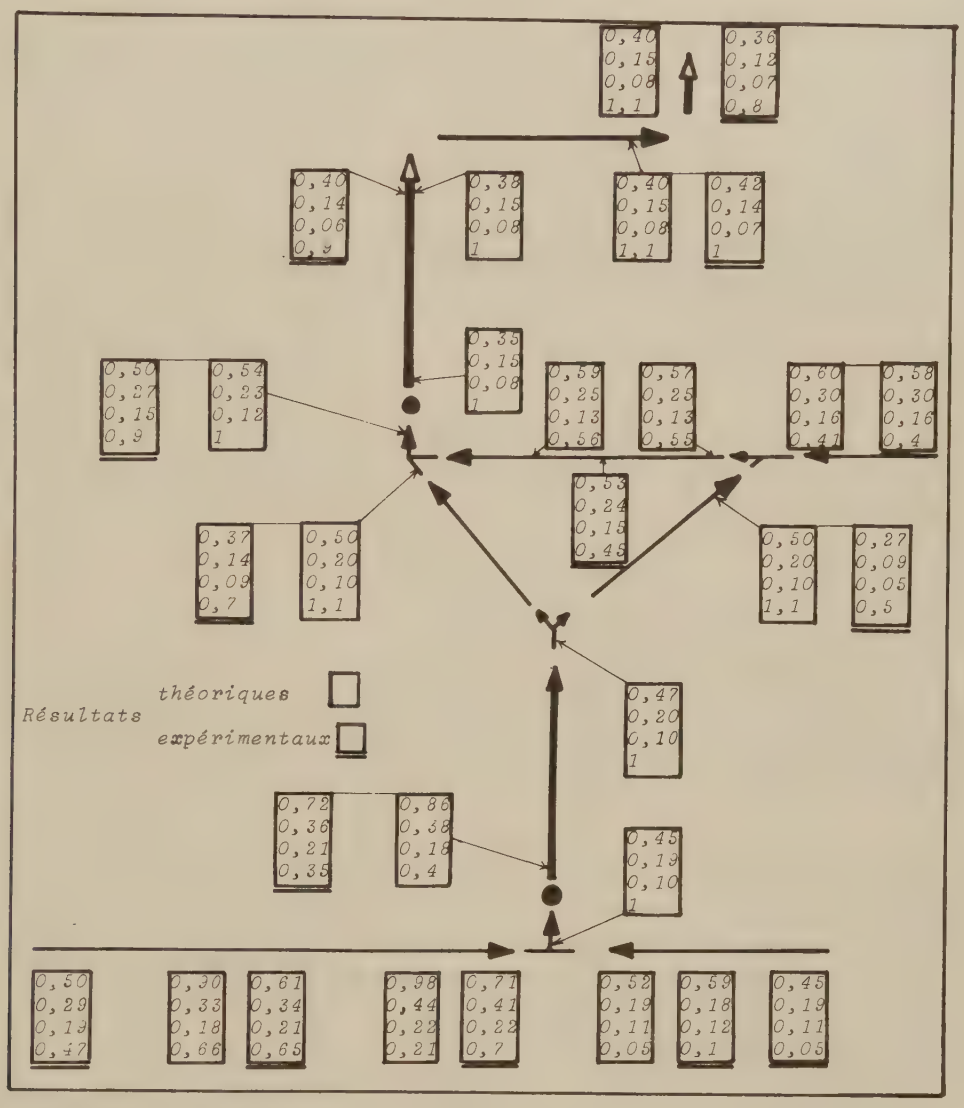



*FIGURE 30 : Comparaison des résultats expérimentaux avec ceux obtenus par simulation.*

- Utilisation envisagée du modèle numérique

Le modèle numérique mis au point est applicable à n'importe quelle mine. En pratique son utilisation nécessite :

- l'adoption d'un schéma tenant compte des données topographiques et de la ventilation ;

- la connaissance des concentrations en radon dans la mine étudiée permettant d'en déduire les sources de radon ;
- la détermination expérimentale des conditions aux points origines.

Une fois cela acquis il n'est pas interdit d'envisager son utilisation pour prévoir :

- l'influence de l'ouverture de nouveaux chantiers, dépilages ou montage ;
- l'influence d'un changement de ventilation.

pour proposer :

- le schéma d'aérage le mieux apte à répondre aux besoins de la radioprotection ;
- enfin, à dresser une carte réelle du danger d'irradiation de toute mine d'uranium dans des conditions données.

*II.1.C - $f_B/f_A$ et $f_C/f_A$*

La distribution en fréquence de ces valeurs est donnée sur les figures 31 et 32. La valeur la plus fréquente est 0,60, 0,30 ($f_B/f_A$, $f_C/f_A$). Les valeurs extrêmes sont 1,00 ; 0,60 et 0,16 ; 0,05. En général on note une augmentation de $f_B/f_A$ et $f_C/f_A$ pour un Eαt croissant (figure 33) .

*II.1.D - $f_{ABC}$ et WLR*

La distribution de $f_{ABC} = 1/3\ (f_A+f_B+f_C)$ est donnée sur la figure 34. $f_{ABC}$ est inférieur à 0,5 (valeur de référence choisie dans les mines françaises) dans 85 % des cas. Les valeurs supérieures à 0,5 se trouvent en presque totalité (95%) dans le groupe des galeries.

Le WLR (Annexe 3) est un rapport très utilisé dans les mines d'uranium américaines pour exprimer le degré d'équilibre entre le radon et ses descendants ; A l'équilibre par définition WLR = 1. Les valeurs extrêmes sont 0,03 et 0,80 (figure 35). On note avec satisfaction que 80% des valeurs sont comprises entre 0,10 et 0,40 confirmant les valeurs de $f_{ABC}$. C'est un argument pour ceux qui préfèrent mesurer le radon pour la radioprotection et appliquer un coefficient de correction pour en déduire le danger d'irradiation global.

On peut noter (cf. figure 33) que, de la même façon que pour $f_B/f_A$ et $f_C/f_A$, la valeur du WLR et de $f_{ABC}$ croit avec l'Eαt.

*II.1.E - Eαt*

Les valeurs de l'Eαt sont comprises entre 0,1 et 20 (valeurs extrêmes) ($1{,}3\ 10^5$ MeV) (figure 36). Il y a 12 % des valeurs de l'Eαt supérieures à 3. Pour les chantiers 78 % de l'Eαt est inférieur à 1 mais pour les galeries il n'y en a que 61 %.

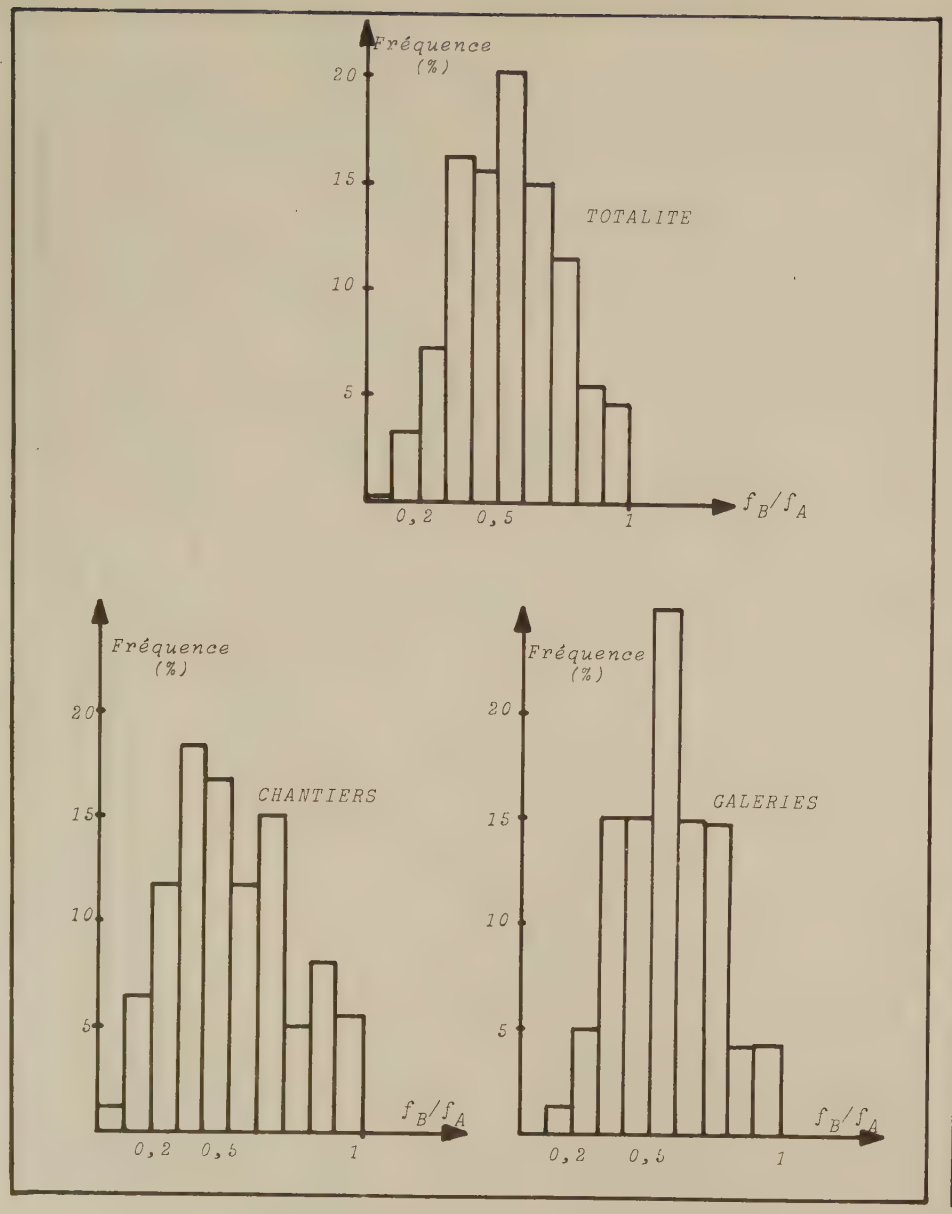



FIGURE 31 : Histogrammes de répartition des valeurs de $f_B/f_A$

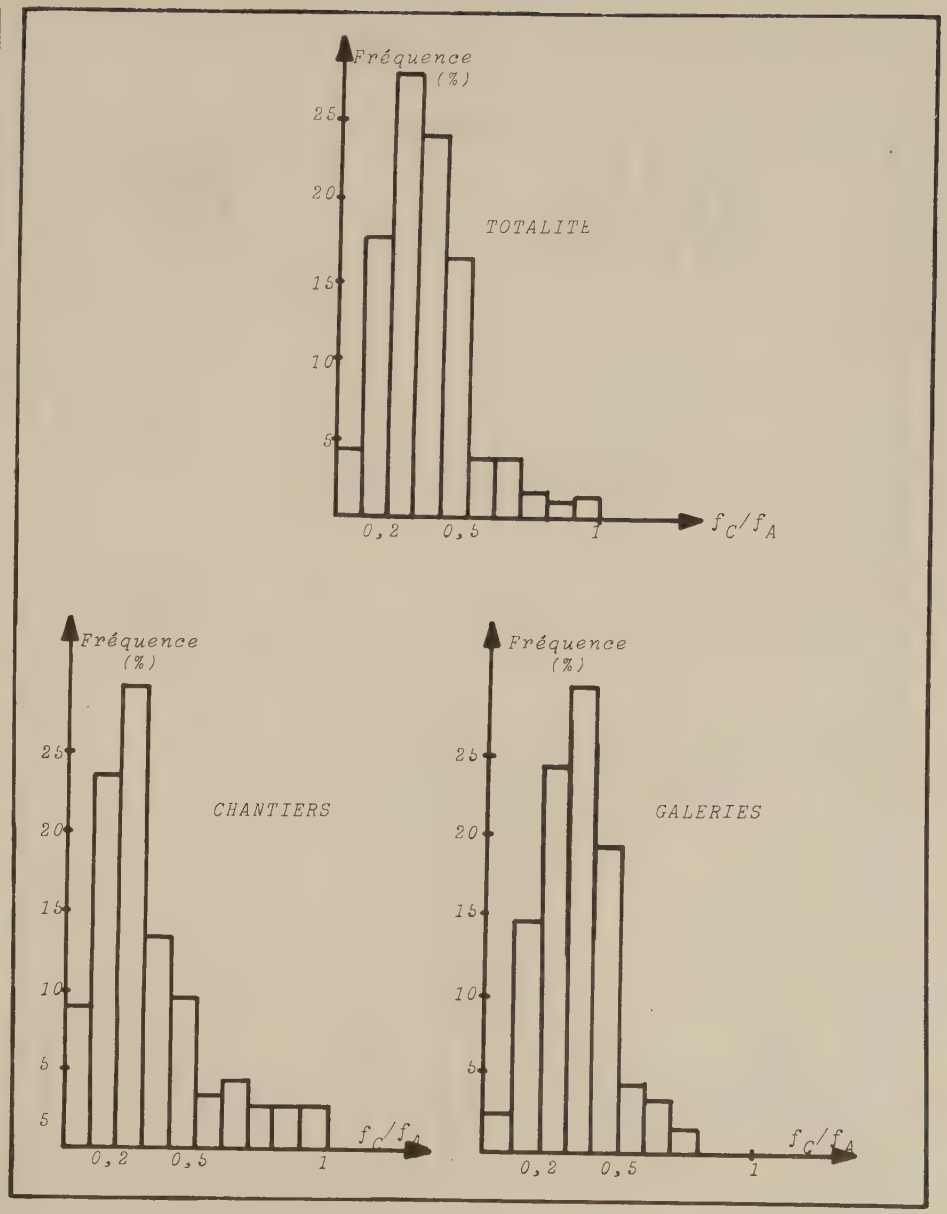



FIGURE 32 : Histogrammes de répartition des valeurs de $f_C/f_A$

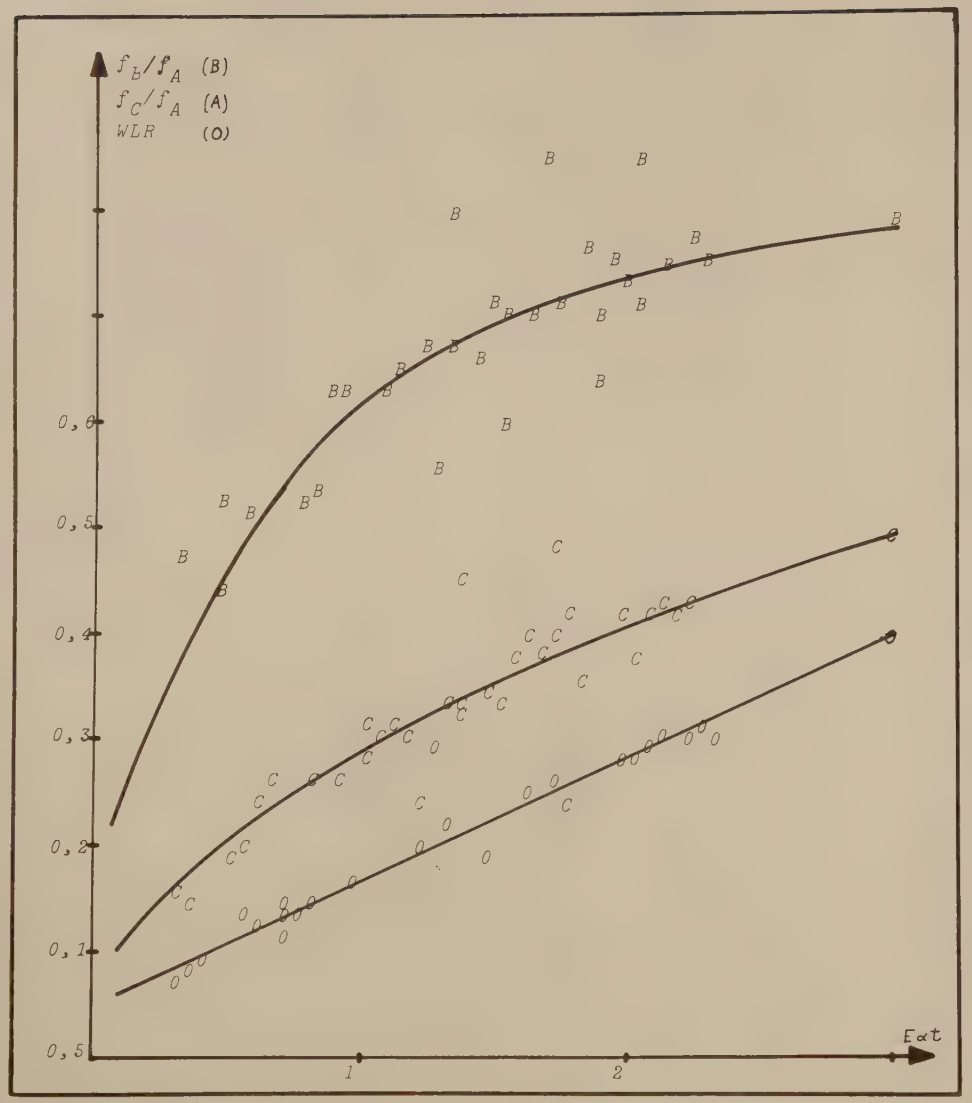



FIGURE 33 : Courbes de variations de $f_B/f_A$, $f_C/f_A$, WLR en fonction de l'Eαt

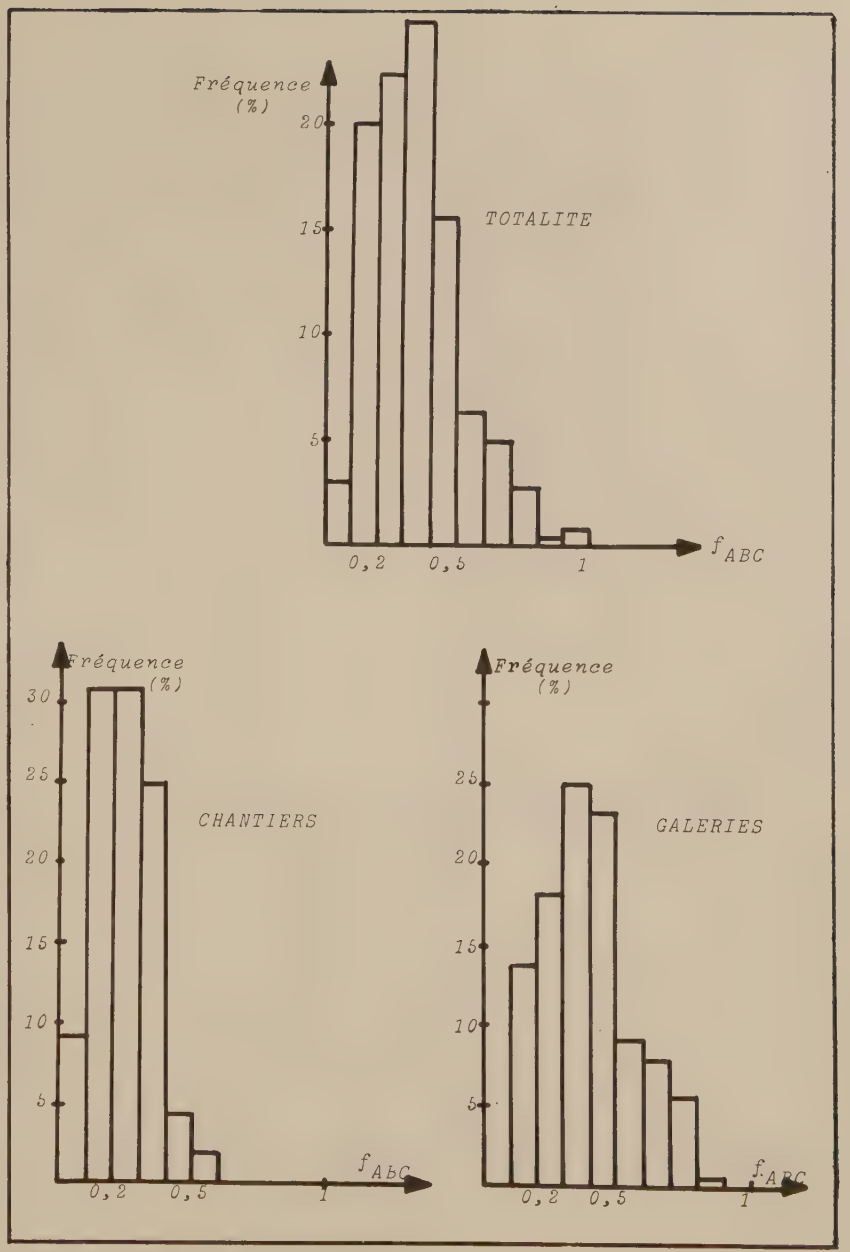



FIGURE 34 : Histogrammes de répartition des valeurs de $f_{ABC}$

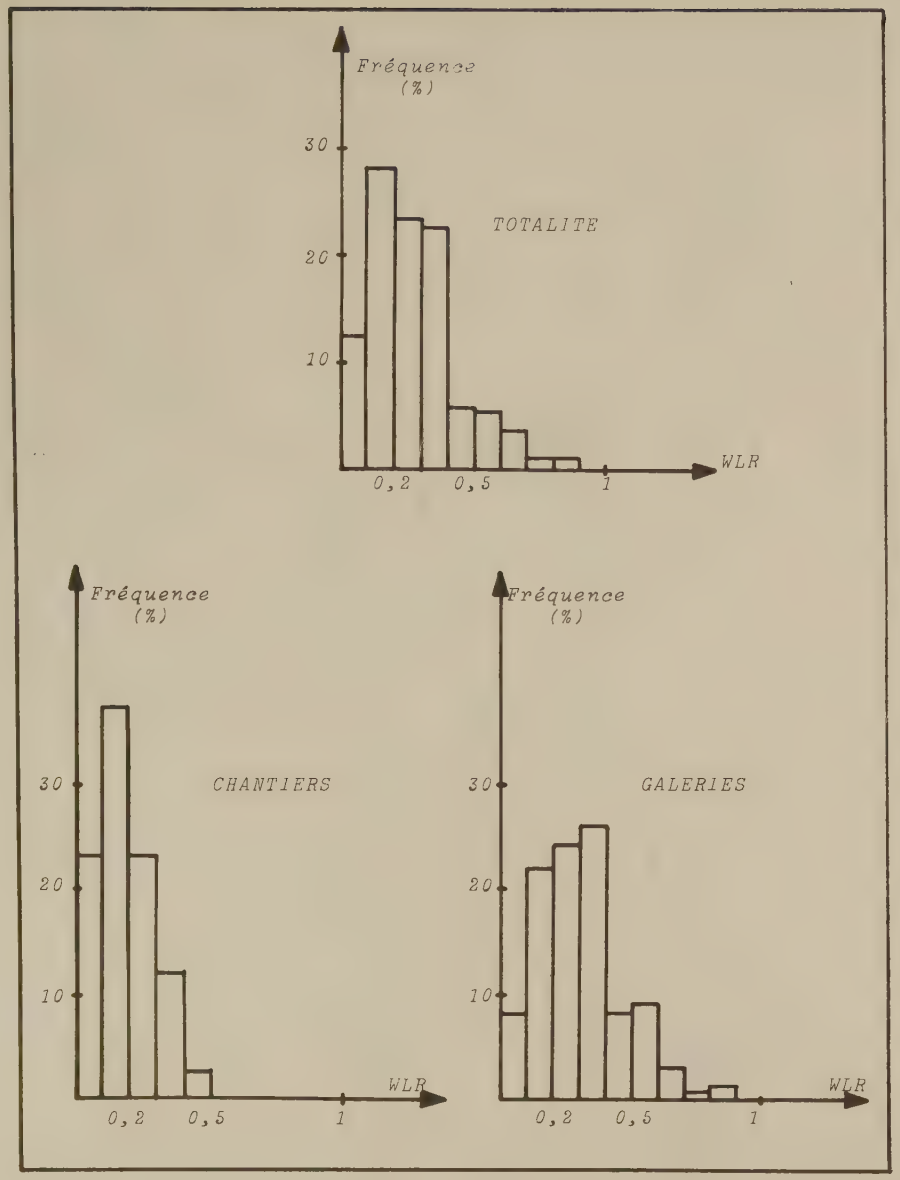



FIGURE 35 :Histogrammes de répartition des valeurs du WLR

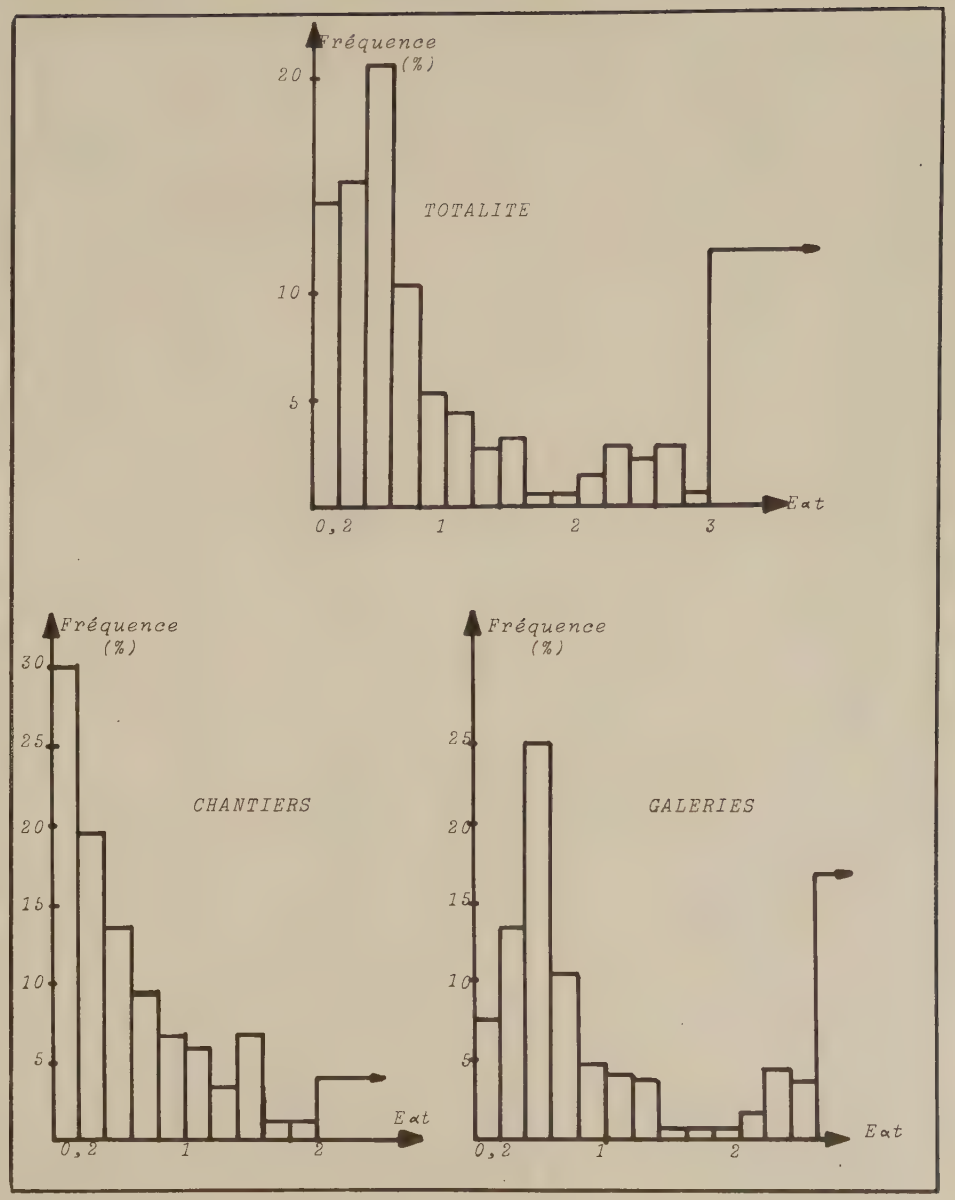



FIGURE 36 : Histogrammes de répartition des valeurs de Eαt

*II.1.F - Contribution de chaque descendant à l'Eαt*

Normalement, si l'équilibre radioactif est établi entre le radon et ses descendants, la contribution de chaque nuclide à l'Eαt est :

pour le $^{218}Po$ : 0,104
$^{214}Pb$ : 0,514
$^{214}Bi$ : 0,382
1,000

*(Annexe 3)*

J'ai calculé pour 4 situations particulières :

- une galerie en cul de sac (Tableau 5) ;
- un chantier en activité (Tableau 6) ;
- une galerie située sur un retour d'air général (Tableau 7) ;
- une galerie de roulement (Tableau 8).

les contributions de chaque descendant à l'Eαt.

Dans les endroits bien ventilés (chantier, galerie) où le déséquilibre est important la contribution du Radium A est plus importante que dans le cas de l'équilibre (0,280 au lieu de 0,104).

Dans les zones peu ou non ventilées, la contribution du radium A est plus faible que précédemment mais dans tous les cas supérieure à la contribution à l'équilibre.

La fraction de l'Eαt provenant du radium B est toujours la plus importante.

II.2 - Variations des concentrations des descendants du radon

*II.2.A - Avec le temps*

Pour illustrer le degré de variation qui peut exister dans un endroit donné de la mine en fonction du temps, j'ai mesuré de façon continue la concentration en radon et de façon fractionnée $f_B/f_A$, $f_C/f_A$. J'ai ainsi obtenu une courbe de variation de l'Eαt en fonction du temps (figure 37). On observe des variations de l'Eαt entre 3 et 7,5 (.1,3 $10^5$MeV) ; ces variations traduisent des changements dans l'activité minière (mouvements de minerai, ventilations secondaires en marche ou arrêtées, etc...). Ces variations sont d'autant plus fortes qu'on se rapproche des chantiers.

*II.2.B - Avec la distance*

Les deux galeries choisies pour l'étude de la variation du radon avec la distance ont été conservées. J'ai étudié l'évolution des valeurs de $f_A$, $f_B$, $f_C$ et de l'Eαt le long de ces galeries. La vitesse de l'air est pratiquement constante à Margnac (0,5 m/s). Par contre, à Fanay, 5 dérivations successives diminuent la ventilation par palier.

| | | | |
|---|---|---|---|
| Concentration en radon | : | 625 ± 80 pCi/l | |
| RaA | : | 590 ± 80 pCi/l | |
| RaB | : | 540 ± 80 pCi/l | |
| RaC | : | 315 ± 60 pCi/l | |
| Energie α totale (Eαt) | | | |
| (1,3 $10^5$ MeV) | | | |
| WLR : 100 E t/Rn | : | 4,60 ± 0,60 | |
| | | 0,73 ± 0,14 | |

| | | |
|---|---|---|
| Rapports $f_A$ = RaA/Rn | : | 0,93 ± 0,21 |
| $f_B$ = RaB/Rn | : | 0,86 ± 0,22 |
| $f_C$ = RaC/Rn | : | 0,50 ± 0,19 |
| $f_{ABC}$ | : | 0,70 ± 0,17 |
| Contribution à l'Eαt du RaA | : | 0,135 |
| RaB | : | 0,590 |
| RaC | : | 0,260 |

Situation de la galerie

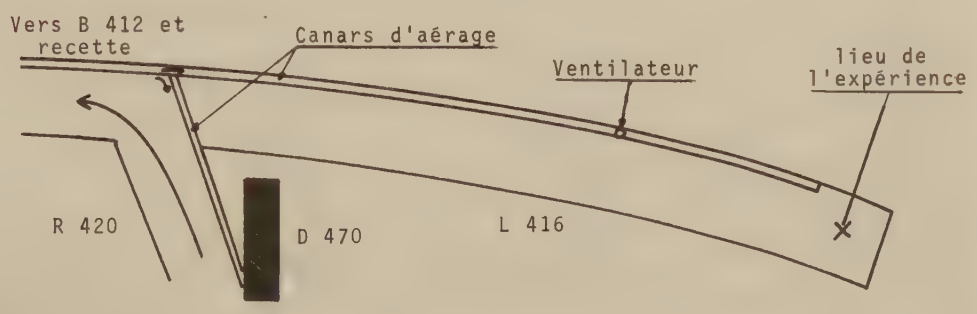



TABLEAU 5 : Galerie en cul de sac - Margnac N.145 - L.416 (18 expériences)

| | | | |
|---|---|---|---|
| Concentration en radon | : | 1980 ± 210 pCi/l | |
| RaA | : | 950 ± 90 pCi/l | |
| RaB | : | 370 ± 50 pCi/l | |
| RaC | : | 180 ± 40 pCi/l | |
| Energie α totale (Eαt) | | | |
| (1,3 $10^5$ MeV) | | | |
| WLR = 100 Eαt/Rn | : | 3,6 ± 0,5 | |
| | | 0,18 ± 0,03 | |

| | | |
|---|---|---|
| Rapports $f_A$ = RaA/Rn | : | 0,48 ± 0,12 |
| $f_B$ = RaB/Rn | : | 0,19 ± 0,05 |
| $f_C$ = RaC/Rn | : | 0,09 ± 0,04 |
| $f_{ABC}$ | : | 0,25 ± 0,04 |
| Contribution à l'Eαt du RaA | : | 0,280 |
| RaB | : | 0,540 |
| RaC | : | 0,180 |

Situation du chantier

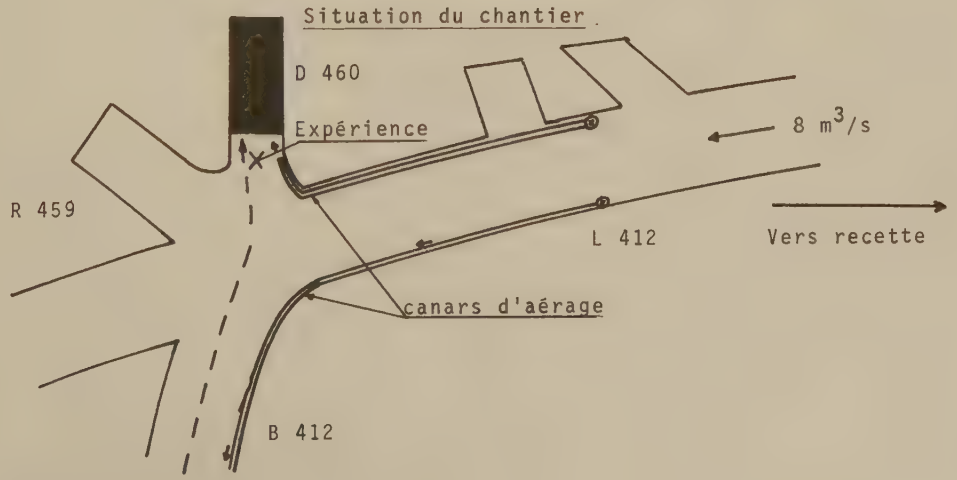



TABLEAU 6 : Chantier en activité - Margnac N.145 - D.460 (20 expériences).

| | | | |
|---|---|---|---|
| Concentration en radon | : 320 ± 35 pCi/l | Rapports $f_A$ = RaA/Rn | : 0,82 ± 0,20 |
| RaA | : 260 ± 30 pCi/l | $f_B$ = RaB/Rn | : 0,50 ± 0,15 |
| RaB | : 160 ± 30 pCi/l | $f_C$ = RaC/Rn | : 0,50 ± 0,15 |
| RaC | : 160 ± 30 pCi/l | $f_{ABC}$ | : 0,61 ± 0,15 |
| Energie α totale (Eαt) | | Contribution à l'Eαt du RaA | : 0,119 |
| ($1,3\ 10^5$ MeV) | | RaB | : 0,505 |
| WLR = 100 Eαt/Rn | : 1,60 ± 0,20 | RaC | : 0,376 |
| | 0,50 ± 0,15 | | |

Situation de la galerie

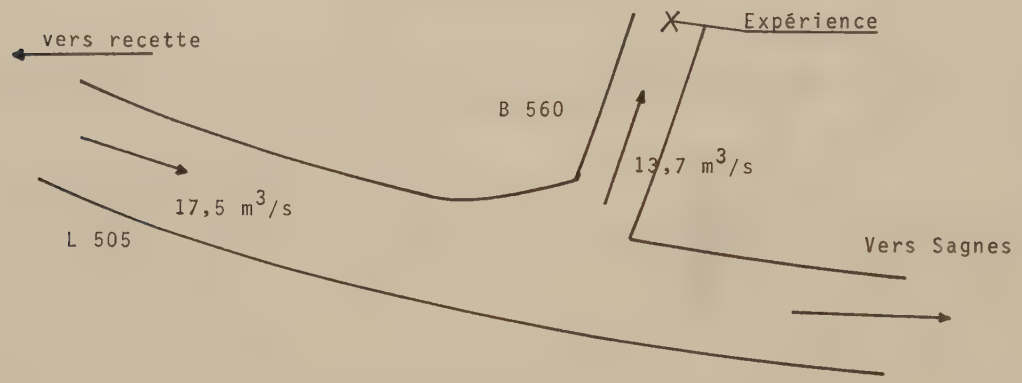



TABLEAU 7 : Galerie de retour d'air - Fanay N.200 - B.560 (12 expériences).

| | | | |
|---|---|---|---|
| Concentration en radon | : 200 ± 22 pCi/l | Rapports $f_A$ = RaA/Rn | : 0,64 ± 0,16 |
| RaA | : 128 ± 18 pCi/l | $f_B$ = RaB/Rn | : 0,38 ± 0,12 |
| RaB | : 75 ± 15 pCi/l | $f_C$ = RaC/Rn | : 0,21 ± 0,10 |
| RaC | : 42 ± 15 pCi/l | $f_{ABC}$ | : 0,44 ± 0,14 |
| Energie α totale (Eαt) | | Contribution à l'Eαt du RaA | : 0,195 |
| ($1,3\ 10^5$ MeV) | | RaB | : 0,570 |
| WLR = 100 Eαt/Rn | : 0,67 ± 0,12 | RaC | : 0,235 |
| | 0,33 ± 0,09 | | |

Situation de la galerie

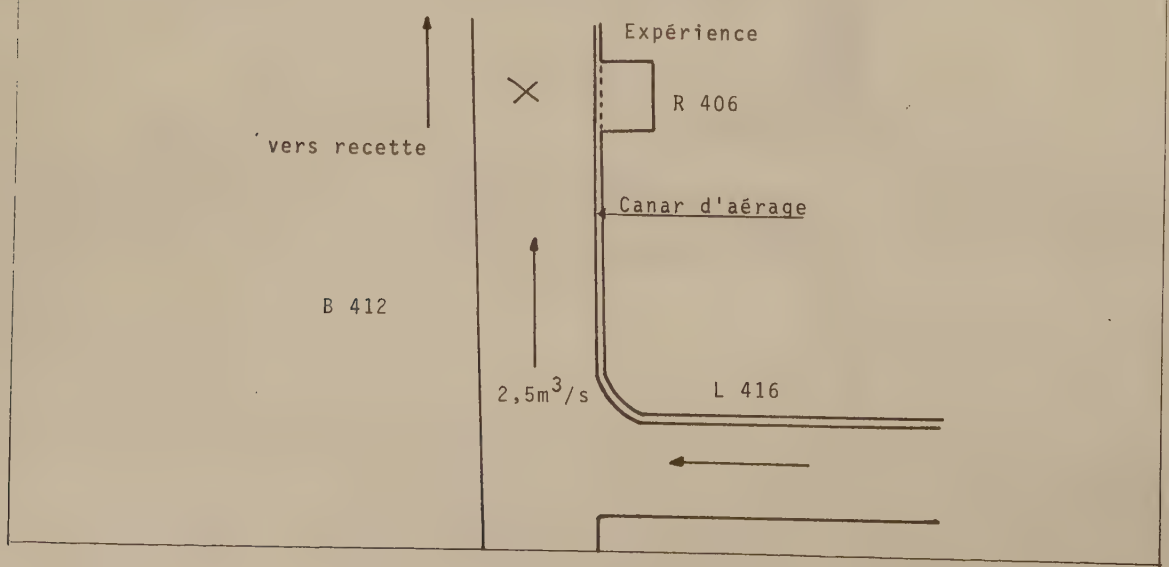



TABLEAU 8 : Galerie de roulement - Margnac N.145 - B.412 (22 expériences).

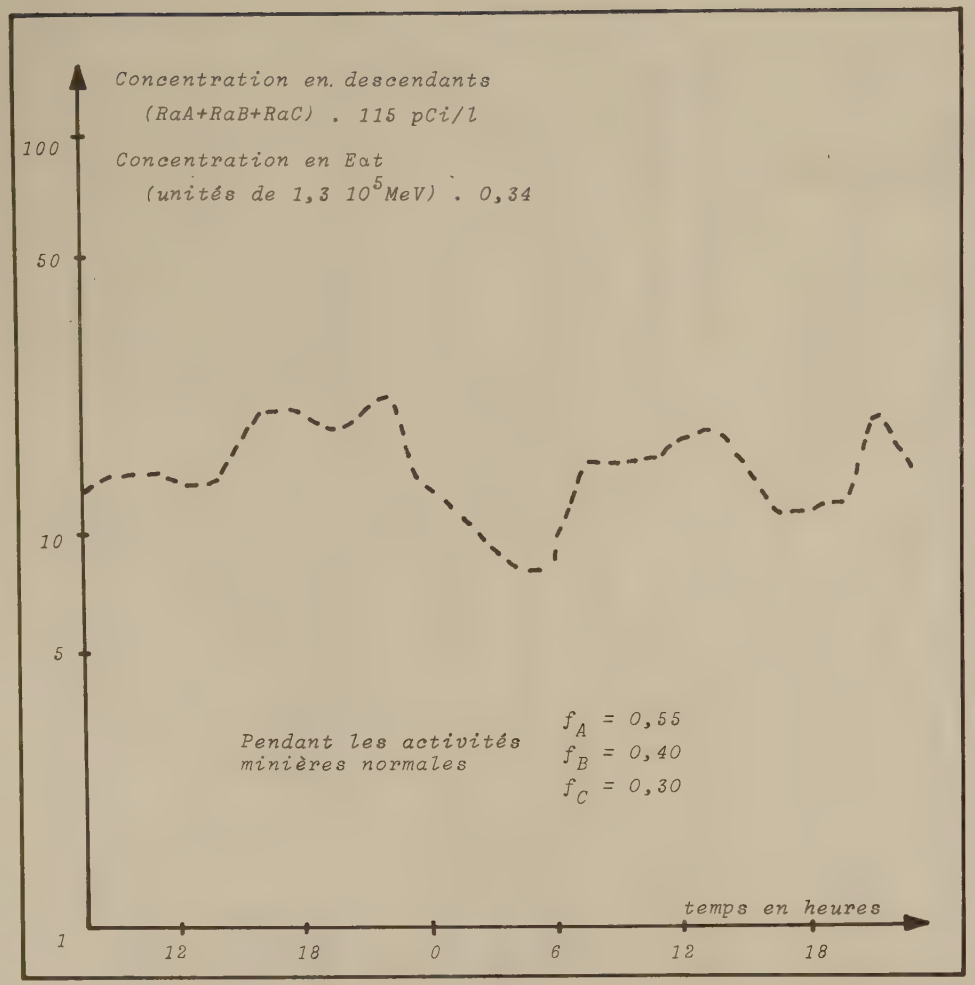



FIGURE 37 : Variation des concentrations en descendants en fonction du temps au "Labo STEP".

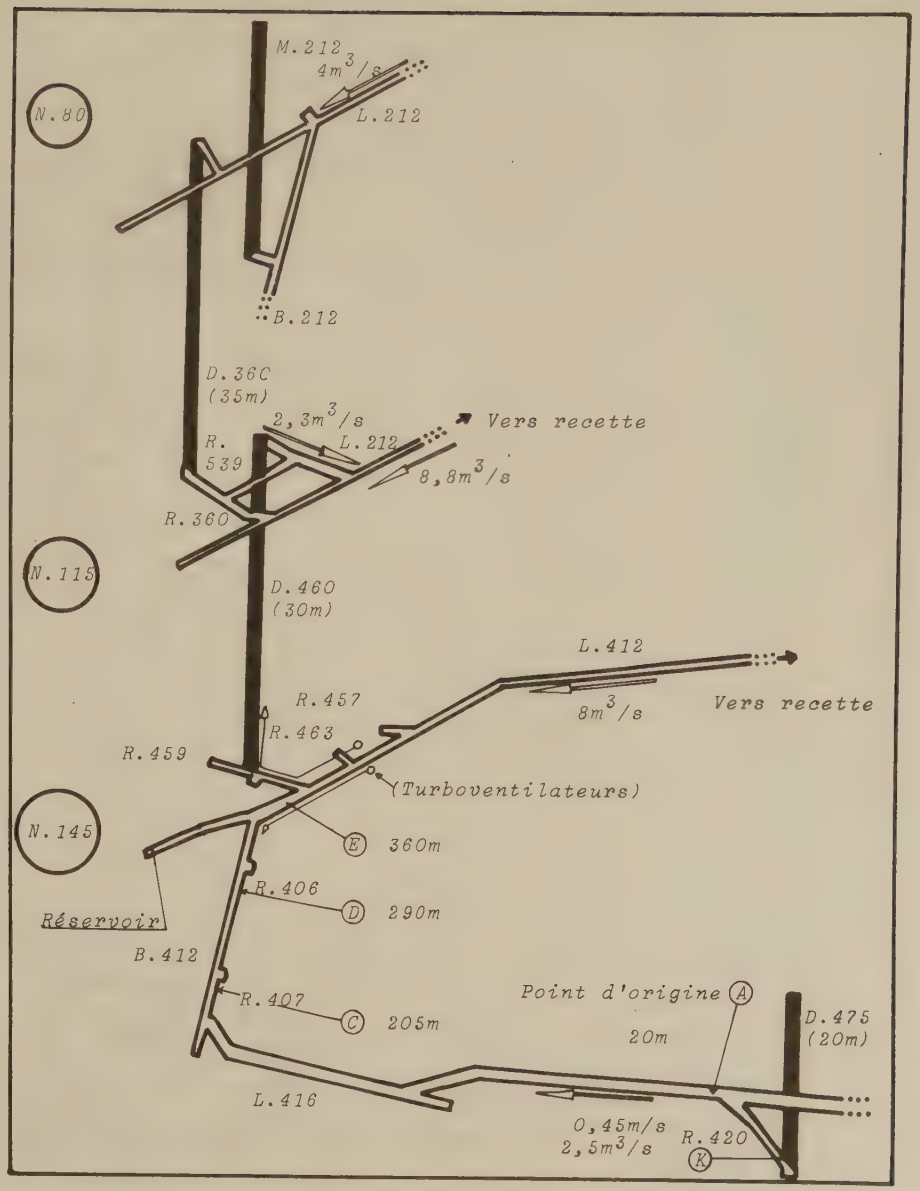



FIGURE 38 : Plan par niveaux décalés d'un quartier de la mine de Margnac (N.145 ; N.115 ; N.80).

*B.a - Galerie L 416, B 412 N.145 Margnac*

La longueur de cette galerie est d'environ 360 mètres. Au point défini comme origine se situe un chantier en cours d'exploitation (D 475) (figure 38). Une quinzaine d'expériences ont été réalisées en chacun des points K, A, C, D, E. Pour permettre d'avoir des résultats comparables, trois mesures simultanées étaient faites en trois points de la galerie.

J'indique sur la figure 39, les variations expérimentales de $f_A$, $f_B$, $f_C$ en fonction de la distance. On note que la croissance de $f_A$ est bien plus lente que la croissance théorique calculée à partir des valeurs à l'origine ; pour une valeur initiale de 0,50, $f_A$ = 0,95 au bout de 600 secondes théoriquement. Des phénomènes de

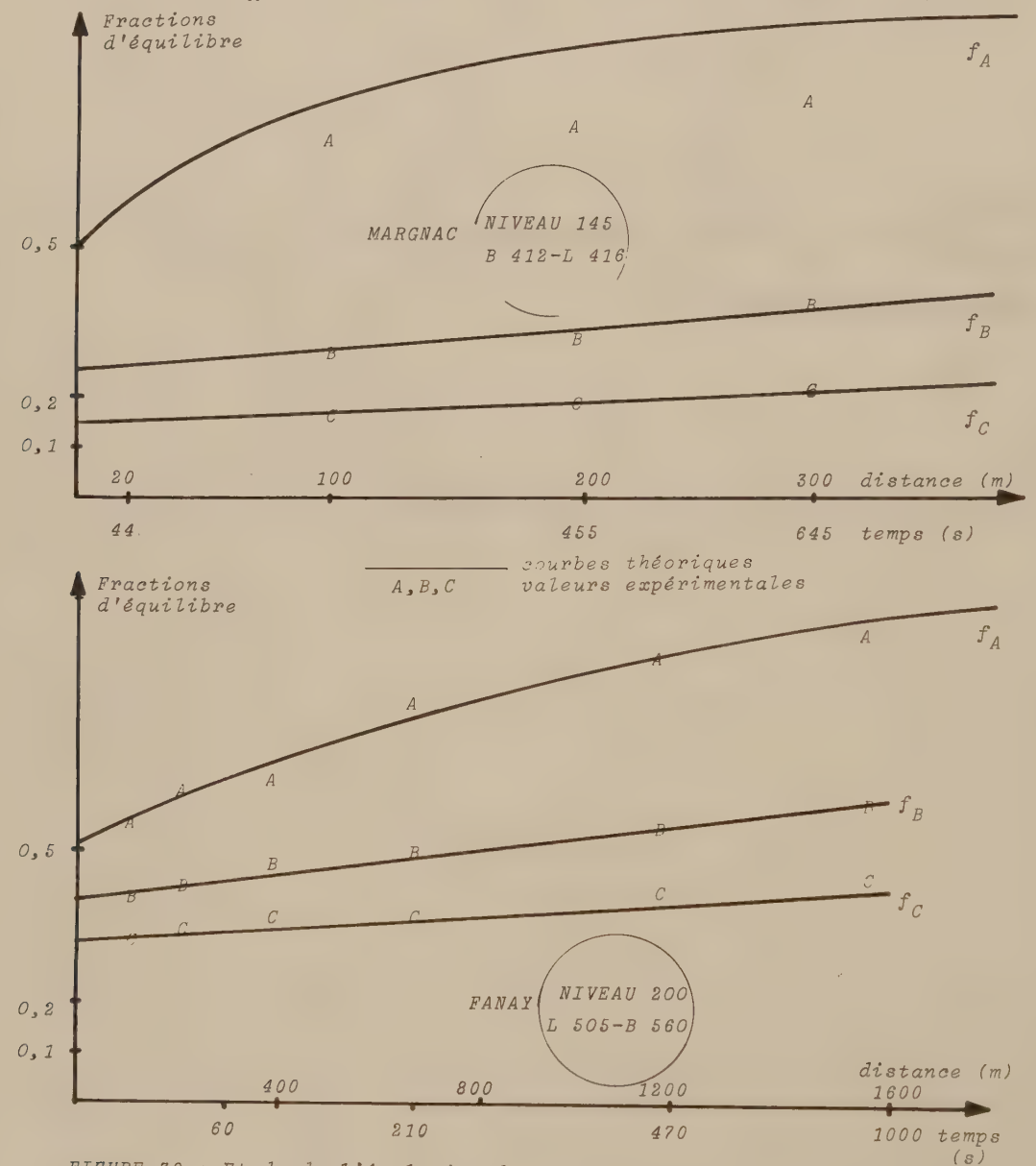



*FIGURE 39 : Etude de l'évolution des fractions d'équilibre en fonction de la distance - Comparaison avec les valeurs théoriques.*

mixage, de dépôt turbulent et de diffusion sur les parois doivent intervenir pour expliquer ces différences.

*B.b - Galerie L 505, B 506 (N. 200) Fanay (figure 40)*

La longueur totale de cette galerie est d'environ 1600 mètres. Le débit de l'air ici n'est pas constant mais cela n'influe pas sur la concentration en radon qui reste à peu près constante sur les 1 600 mètres (cf. figure 21).

La figure 39 montre les variations de $f_A$, $f_B$, $f_C$ avec la distance.

On note une augmentation plus conforme à la théorie de $f_A$, $f_B$, $f_C$.

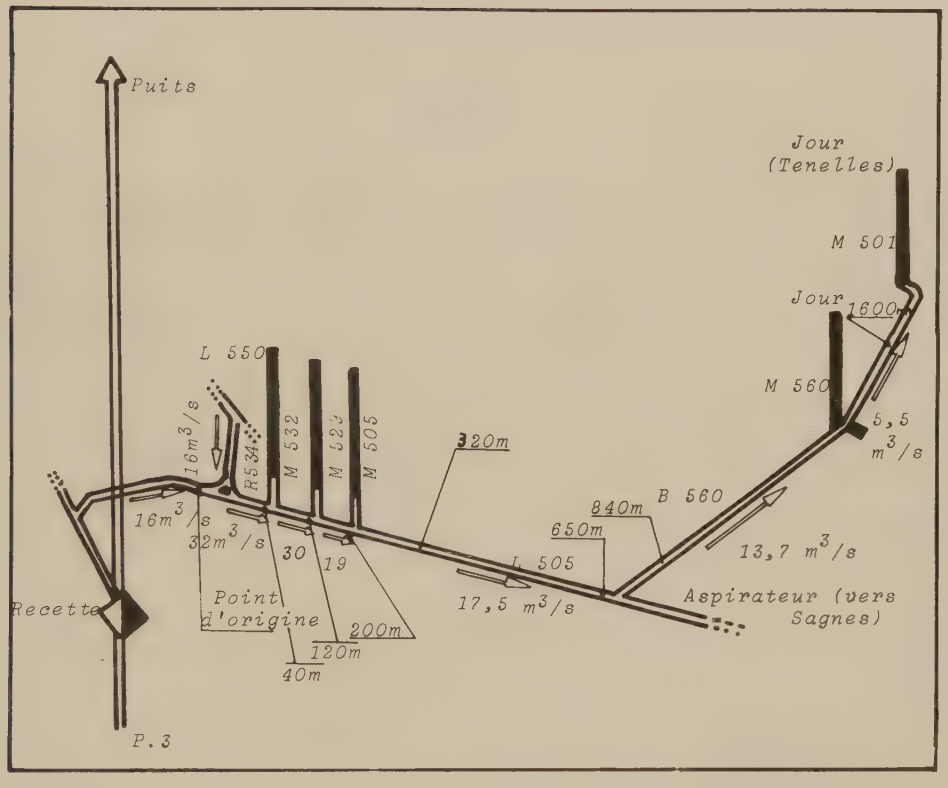



*FIGURE 40 : Schéma du niveau 200 de la mine de Fanay.*

*II.2.C - Confluence et dérivation*

Pour vérifier les hypothèses faites dans le modèle numérique de nombreuses mesures ont été faites. Les résultats en sont rassemblés dans le tableau 9. On note que les relations données dans le chapitre II sont vérifiées expérimentalement.

II.3 - Etude de la nature des descendants solides radioactifs

Trois familles radioactives contribuent au fond naturel de la radioactivité :

| Mine et niveau | Lieu | Ventilation ($m^3/s$) | Fractions d'équilibre $f_A$ | $f_B$ | $f_C$ | Concentration en radon (PCi/l) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| MARGNAC Niveau 145 | E | 2,5 | 0,71 | 0,41 | 0,22 | 205 |
| | G | 3 | 0,45 | 0,19 | 0,11 | 75 |
| | F | 5,5 | 0,51 | 0,29 | 0,16 | 135 |
| MARGNAC Niveau 115 | U | 8,8 | 0,58 | 0,30 | 0,16 | 158 |
| | P | 2,3 | 0,27 | 0,09 | 0,05 | 485 |
| | Q | 11,1 | 0,53 | 0,24 | 0,15 | 220 |
| FANAY Niveau 160 | A | 2,4 | 0,30 | 0,13 | 0,08 | 276 |
| | C | 3,6 | 0,68 | 0,27 | 0,19 | 332 |
| | D | 6 | 0,48 | 0,24 | 0,14 | 330 |
| FANAY Niveau 200 | F | 14,5 | 0,52 | 0,45 | 0,31 | 310 |
| | E | 16 | 0,81 | 0,60 | 0,53 | 384 |
| | G | 30,5 | 0,63 | 0,50 | 0,39 | 342 |

CONFLUENCE

| Mine et niveau | Lieu | Ventilation ($m^3/s$) | Fractions d'équilibre $f_A$ | $f_B$ | $f_C$ | Concentration en radon (PCi/l) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| FANAY Niveau 200 | L | 17,5 | 0,81 | 0,43 | 0,48 | 310 |
| | M | 13,7 | 0,84 | 0,50 | 0,50 | 306 |
| | N | 3,8 | 0,85 | 0,45 | 0,53 | 314 |
| FANAY Niveau 200 | H | 32 | 0,52 | 0,45 | 0,32 | 384 |
| | I | 30 | 0,60 | 0,51 | 0,39 | 342 |
| | J | 2 | 0,55 | 0,40 | 0,35 | 356 |

DERIVATION

TABLEAU 9

celles du :

- radon
- thoron
- actinon.

A priori dans les mines d'uranium l'abondance respective de chacune de ces 3 familles ne peut être connue. Pour nous permettre de chiffrer cette abondance nous avons utilisé la méthode spectrométrique (déjà utilisée par LASSEUR (La-3)).

L'installation de mesure composée du spectromètre α (décrit au chapitre I) associée à un analyseur 400 canaux a été placée au "labo 120". Pour des aspirations de faible durée (inférieure à 30 minutes) on n'obtient que des descendants du radon. Pour des aspirations plus longues il y a apparition des descendants du thoron et de l'actinon (figure 41) en faible quantité il est vrai. Cela justifie le fait que dans les calculs, j'ai négligé l'apport des descendants du thoron et de l'actinon.

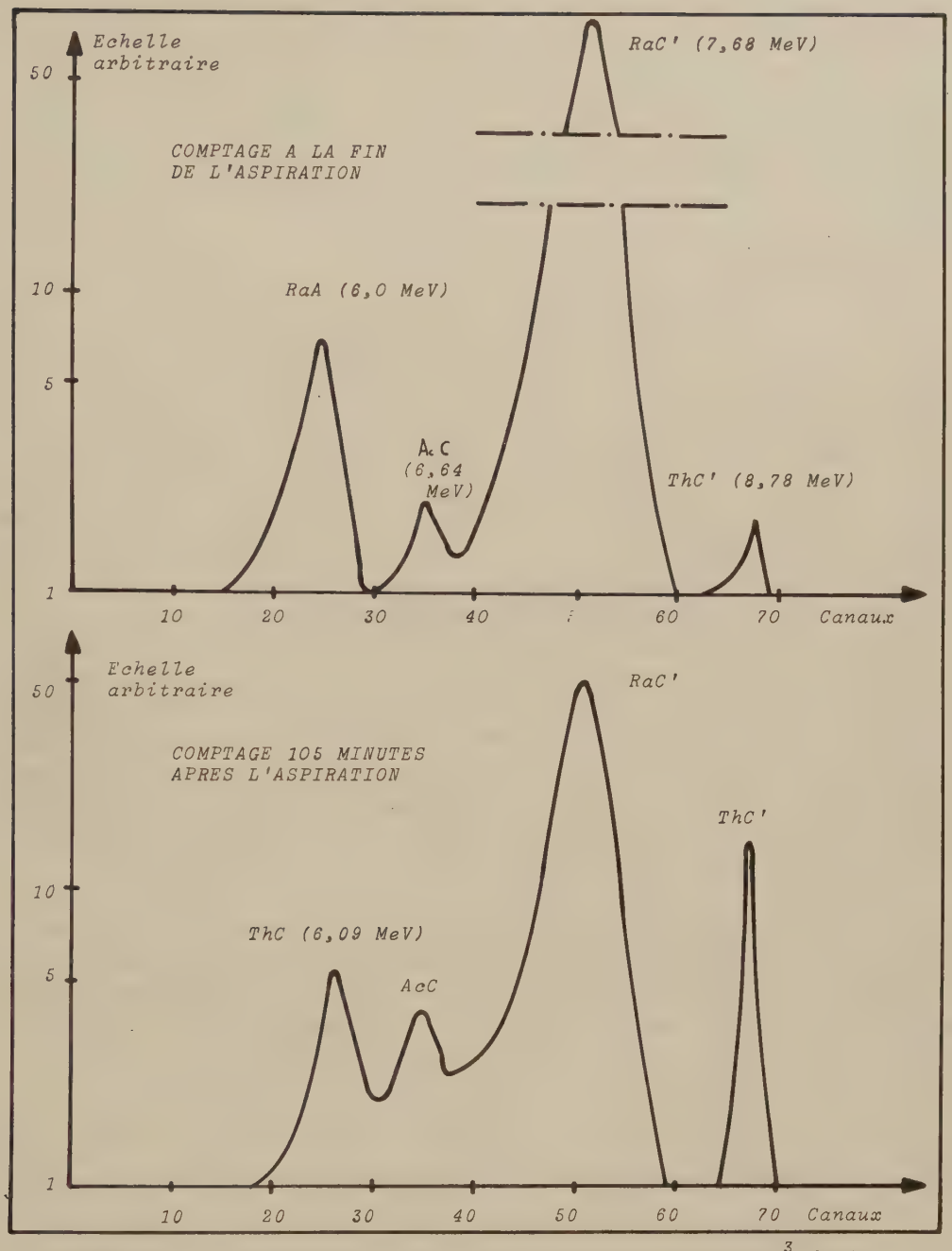



*FIGURE 41 : Spectrométrie α d'un filtre ayant aspiré 7,2 $m^3$ d'air dans la mine.*

II.4 - Discussion générale

Les mesures faites dans l'atmosphère des mines d'uranium n'ont pas d'autre but que la radioprotection. Il semble donc nécessaire de discuter de façon générale des études de protection faites actuellement et des incidences sur la santé. Il n'existe aucune donnée reliant les cancers du poumon aux concentrations en radon et en descendants au-dessous d'une exposition cumulée de 1 000 Eαt par mois. Pour de faibles

doses il est nécessaire d'attendre extrêmement longtemps avant d'obtenir des résultats expérimentaux sûrs et exploitables.

Deux directions ont été utilisées par les chercheurs :

- utilisation de modèles qui permettent de chiffrer l'irradiation subie par les différentes parties de l'appareil respiratoire. Les résultats obtenus sont très divergents à cause des hypothèses faites ;
- calcul de probabilité (Ar-2).

Il y a un autre aspect du problème qu'il faut envisager. Pendant le poste de travail (8 heures), le mineur ne reste pas tout le temps à un même endroit. Il faut qu'il s'occupe de la maintenance de son matériel, qu'il conduise le minerai à la recette, qu'il fasse des pauses, etc... En conséquence, il est très difficile de calculer quantitativement l'exposition subie ou d'estimer la dose d'irradiation reçue par les poumons. Actuellement la radioprotection dans les mines d'uranium, tant françaises qu'étrangères, est basée sur des prélèvements courts en de nombreux endroits des mines. Cela entraîne une très faible précision sur la dose cumulative reçue par les mineurs car elle dépend surtout des temps relatifs passés par les mineurs dans chaque endroit.

Un autre facteur important qui influence l'exposition cumulative calculée est la fluctuation de la concentration en radon et en descendants (donc de l'E$\alpha$t) en fonction du temps. Cette variation est bien visible sur la figure 37. Les écarts enregistrés sont encore plus importants sur un lieu de travail. Une solution pourrait être la multiplication dans le temps et l'espace des prélèvements. Quatre prélèvements dans un lieu donné sont nécessaires pour obtenir une précision de $\pm$ 25 %. Cependant les services de protection sont limités par le nombre de personnes nécessaires au prélèvement et à l'analyse des échantillons.

Cette courte discussion avait pour but de montrer quelques problèmes posés par l'estimation de l'exposition reçue par les mineurs d'uranium. Une grande partie de ces problèmes pourrait être éliminée par l'utilisation d'un détecteur personnel qui intègrerait l'exposition due au radon et à ses descendants.

-:-:-:-:-:-

# DEUXIEME PARTIE

---

CARACTERISATION PHYSIQUE

DE L'ATMOSPHERE DES MINES D'URANIUM

---

*De grande quantités de radon existent dans les mines d'uranium. Les descendants radioactifs solides du radon sont émis sous forme de noyaux de recul ionisés positivement (Re-1, Hu-1). Ils évoluent rapidement en donnant par agglomération avec des molécules neutres des ions de mobilités plus faibles. Ils peuvent aussi se neutraliser avec les ions de l'air et évoluer en tant que particules neutres. Enfin ces particules neutres peuvent de nouveau acquérir une charge positive ou négative. Ces particules radioactives peuvent se fixer à un moment ou à un autre sur les noyaux de condensation en suspension dans l'air de la mine pour former des aérosols radioactifs. Les noyaux de condensation, quant à eux, sont générés principalement par un processus mécanique (forage, chargement, tir...).*

*Les différents modes de formation conduisent à des noyaux de taille, de nature et d'état de charge très différents.*

*En résumé nous trouvons dans l'atmosphère des mines d'uranium :*

- *des petits ions produits par les radiations ionisantes ($\alpha$, $\beta$, $\gamma$) ; très petits, (d'un rayon inférieur à $10^{-7}$ cm), ils ont une mobilité très grande et sont présents en très grand nombre (quelques $10^5$ particules/$cm^3$) ;*
- *des particules radioactives ultrafines en concentration bien plus faible que les précédentes ;*
- *les noyaux de condensation de dimension supérieure à $10^{-7}$ cm. Radioactifs (lorsqu'ils ont fixé un descendant radioactif) ou non, leur grosseur, concentration et état de charge dépendent de leur mode de production et de leur temps de vie ;*
- *les poussières et gros ions, particules de rayon supérieur à $10^{-6}$ cm ; leur influence se limite autour de leur source de production car ils sont rapidement éliminés par sédimentation, impaction, turbulence...*

*Pour caractériser ces particules de taille, nature, état de charge très divers , il est nécessaire d'utiliser de nombreuses techniques de mesure :*

- *par diffusion de lumière pour mesurer les concentrations en noyaux de condensation et les poussières ;*
- *par précipitation électrostatique pour étudier l'état de charge ;*
- *par diffusion dans des batteries adéquates pour mesurer la taille ;*
- *par analyse chimique ou aux R.X. pour étudier la nature.*

*Les principes de toutes les méthodes que j'ai utilisées sont présentés dans le premier chapitre ainsi que les moyens nécessaires à l'expérimentation.*

*De nombreux paramètres influencent de façon plus ou moins importante l'évolution des caractéristiques de ces particules minières (turbulence, fixation, dépôt, coagulation...). Je dresse le bilan théorique des différentes actions de ces divers paramètres dans le chapitre II.*

*Je présente dans le chapitre III les résultats expérimentaux que j'ai obtenus ; cela me permet de dresser une physionomie de l'aérosol minier et en tenant compte des considérations théoriques du chapitre précédent d'expliquer certains phénomènes.*

# CHAPITRE I

## PRINCIPE DES METHODES ET MOYENS EXPERIMENTAUX

### I. DETERMINATION DE LA CONCENTRATION EN PARTICULES

#### I.1 - Noyaux de concentration

##### *I.1.A - Principe*

Pour caractériser la population particulaire présente dans l'atmosphère minière, j'utilise un compteur du type Pollak (Po-3). De nombreux compteurs de ce type existent dans le monde, mais ils sont lourds, encombrants. Pour effectuer des mesures sur le terrain, il a été nécessaire de réaliser un appareil autonome, automatique, robuste et portatif. Ce travail a été réalisé par CABROL (Ca-1) poursuivant un travail ébauché par le Professeur KAWANO. Le principe général de l'appareil est classique ; (Po-4, Ri-1) deux phénomènes sont à sa base :

- condensation ;
- extinction.

La condensation est réalisée par une détente adiabatique dans un milieu sursaturé en vapeur d'eau. La mesure de l'extinction d'un faisceau lumineux permet de déduire la concentration en particules.

##### *I.1.B - Dispositif expérimental*

La chambre de mesure a un volume de 210 $cm^3$ et est limitée à ses extrémités par deux lames de verre. L'appareil fonctionne en position horizontale contrairement aux autres types de compteurs (Po-3, Ri-1, Ma-2, Ma-3) mais des mesures expérimentales ont montré qu'il n'y avait pas de positions privilégiées (Ca-1). Le système de compression est constitué par un ensemble cylindre-piston . L'échantillonnage de l'air s'effectue avec une pompe à circulation et l'entrée de l'air est directe. Le détecteur est une cellule photorésistante à réponse linéaire (figure 42). L'appareil fonctionne à partir d'une batterie de 6 volts 80 A.-h. il a ainsi une autonomie de 35 heures. Le compteur est contenu dans un parallélépipède de 500 x 210 x 70 mm et son poids est d'environ 5 kg . Sa sensibilité en utilisation normale est de 1000 $p/cm^3$ ; un système multiplicateur permet d'atteindre la valeur de 100 $p/cm^3$.

De la même façon que les CAP 10,les compteurs de noyaux de condensation peuvent être utilisés de deux manières : mesures discontinues en différents points des mines pour déterminer les sources de noyaux et aussi étude en un point fixe des

caractéristiques de ces noyaux.

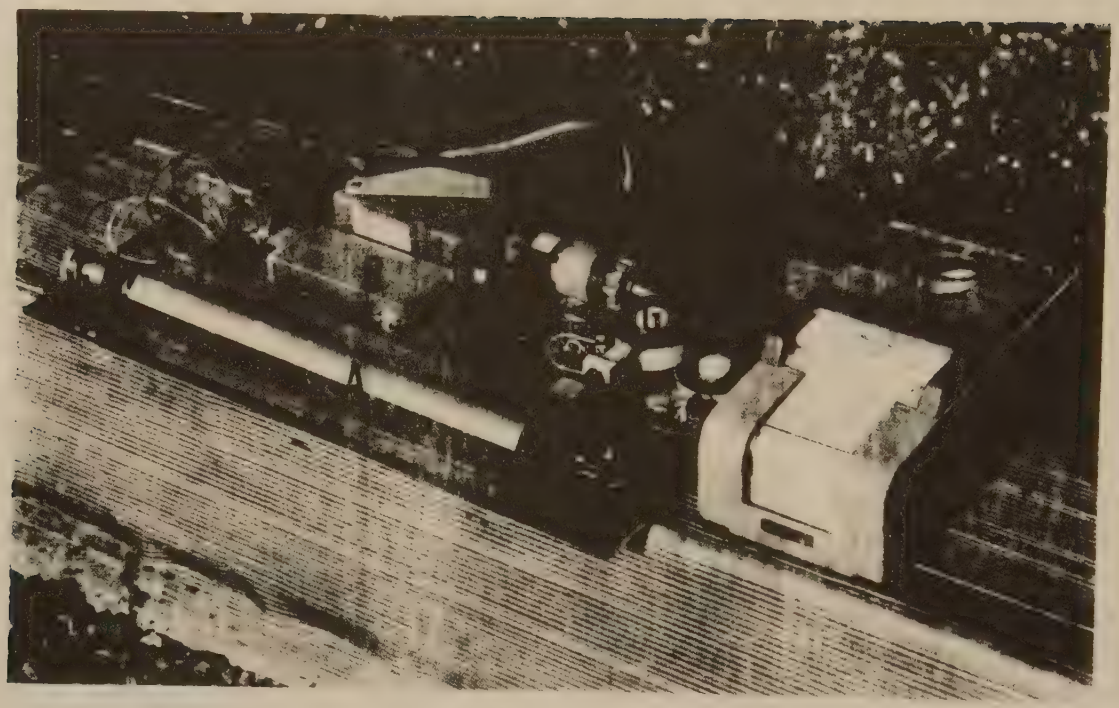


**FIGURE 42 : Installation de mesure des noyaux d'Aitken,**
A : chambre de mesure
B : chambre de compression
C : pompe
D : moteur
E : système optique
G : programateur.

I.2 - Compteurs de poussières

Pour mesurer la concentration en particules de rayon supérieur à $5.10^{-5}$cm, nous avons utilisé un compteur photoélectrique ROYCO, type PC 210. La limite supérieure en taille est de $1,6\ 10^{-3}$cm. Au-delà de 500 particules par $cm^3$, il est nécessaire d'utiliser un système diluteur.

II. DETERMINATION DE LA TAILLE DES PARTICULES

II.1 - Lois générales

Les particules présentes dans l'atmosphère des mines d'uranium existent sous forme neutre et ionisée en dimensions variables (depuis quelques angströms jusqu'à quelques microns). Les particules neutres ou chargées sont caractérisées par leur coefficient de diffusion D qui est représentatif du mouvement brownien (D s'exprime en $cm^2/s$). Les particules chargées sont caractérisées par leur mobilité k, telle que :

$$k = V/E$$

où V est la vitesse (en cm/s) que prend l'ion sous l'action d'un champ électrique E (en volts), k s'exprime en $cm^2/s/V$.

La relation d'Einstein permet de relier le coefficient D à la mobilité k :

$$D = \frac{kKT}{e} \qquad (1)$$

K... constante de Boltzman
T... température absolue ($\theta°K$)
e... charge élémentaire (ues cgs)

En remplaçant les constantes par leurs valeurs numériques, on obtient :

$$D = 2{,}5\ 10^{-2} k \qquad \text{ou} \qquad k \# 40\ D$$

Il n'existe pas de loi générale reliant le paramètre expérimental (D ou k) à la taille de la particule, mais seulement des relations valables dans un domaine restreint (particules plus petites ou plus grandes que le libre parcours moyen).

- Pour des particules de rayon inférieur à $10^{-7}$cm : (particules de rayon bien inférieur au libre parcours moyen) on utilise la formule de LANGEVIN (La-4) :

$$D = \frac{3\sqrt{2}}{16\ n'\sigma^2\sqrt{\pi}} \left(KT\ \left(\frac{m+mi}{m.mi}\right)\right)^{1/2} \qquad (2)$$

σ..... rayon de la sphère d'action
n'..... nombre de particules par unité de volume
m et mi.. sont respectivement les masses de la molécule et de l'ion
K et T... déjà définis.

En remplaçant les constantes par leurs valeurs numériques dans (1) et (2), on obtient (Is-1) :

$$k = \frac{8{,}2\ 10^{-15}}{r^2}$$

r... rayon de la particule (cm)

- Pour des particules plus grosses : (de rayon r supérieur à $10^{-7}$cm) on emploie la formule de STOKES-CUNIMGHAM corrigée par MILLIKAN (Mi-2 , Cu-1) :

$$D = \frac{KT}{6\pi\eta r}\left(1 + 0{,}86\ \frac{\lambda^\dagger}{r} + 0{,}29\ \frac{\lambda^\dagger}{r}\ e^{-1{,}25\ r/\lambda^\dagger}\right)$$

η... viscosité de l'air exprimée en poise
$\lambda^\dagger$.. libre parcours moyen des molécules d'air (cm)

La figure 43 donne les variations de la mobilité (I) et du coefficient de diffusion (II) en fonction du rayon de la particule dans le cas de l'air. Pour des particules de rayon inférieur à $10^{-7}$cm le comportement des particules chargées est différent de celui des particules neutres du point de vue de la diffusion. La courbe III de la figure 43 rend compte de ce fait.

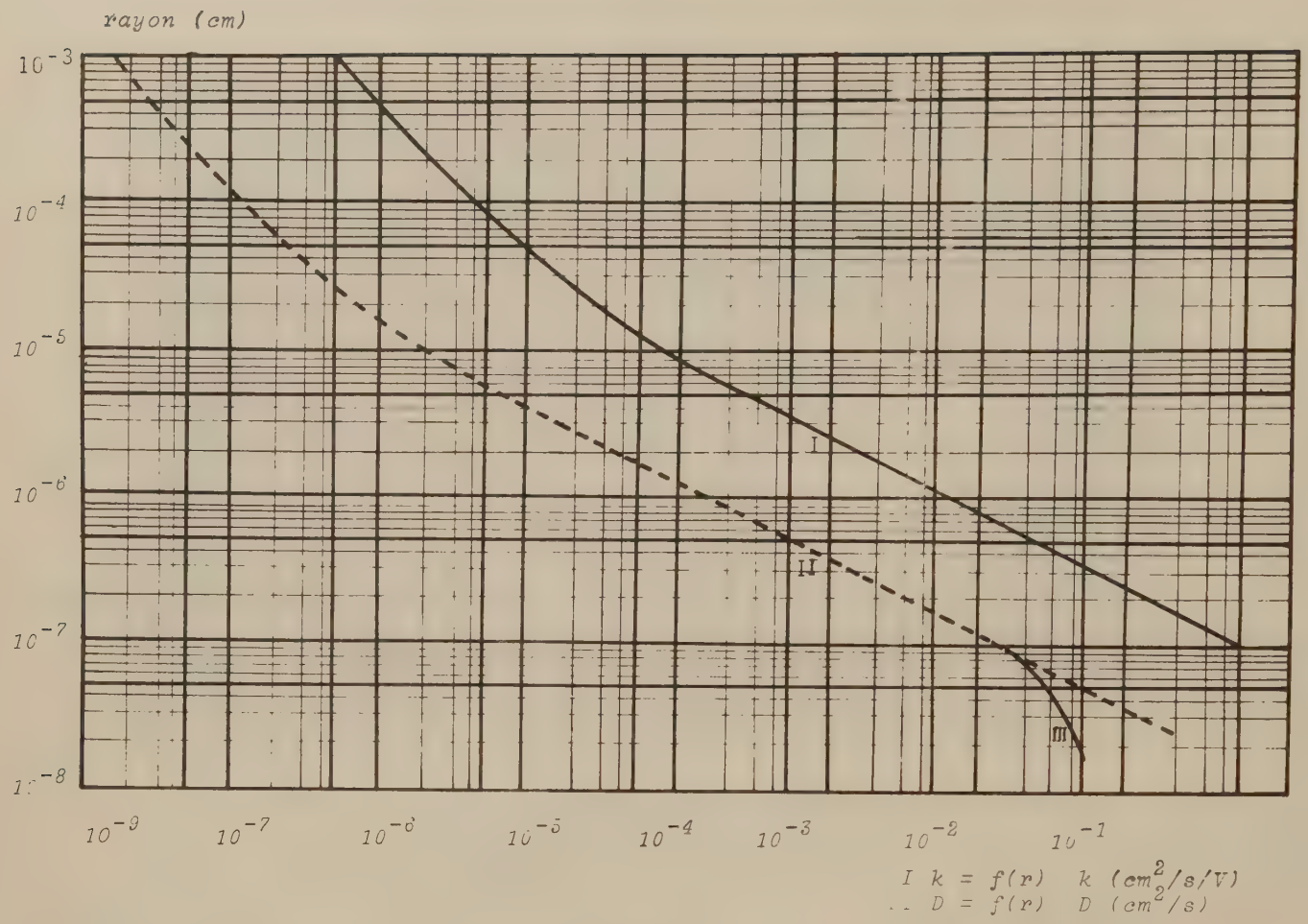



*FIGURE 43 : Courbes de variation de la mobilité (k) et du coefficient de diffusion (D) en fonction du rayon des particules (r).*

II.2 - Capteurs

*II.2.A - Précipitateurs électrostatiques*

*A-a - Cylindriques*

Ils sont composés d'un cylindre dans l'axe duquel est tendu un fil que l'on peut porter à différentes tensions $V_1$, $V_2$, $V_3$... par rapport au cylindre (Ze-1; Re-1). Lorsqu'une différence de potentiel $V_1$ est établie entre le fil et le cylindre tous les ions de mobilité k supérieure à la mobilité limite $k_1$ du capteur sont piégés. Pour un régime d'écoulement laminaire et établi.

$$k_1 = \frac{Q}{2\pi V_1 l} \text{Log} \frac{b}{a} \qquad (3)$$

Q... débit de l'air (en $cm^3/s$)
$V_1$.. différence de potentiel fil-cylindre (en volts)
l... longueur utile du précipitateur (cm)
a... rayon du fil axial (cm)
b... rayon du tube extérieur (cm)

Un ion de mobilité k' inférieure à $k_1$ mais arrivant dans le précipitateur à une distance inférieure à b peut être capté . La proportion d'ions incidents captés par le précipitateur a été calculée par MADELAINE (Ma-4).

$$F_r = \frac{A}{\Delta r} \left( \text{Log} \frac{r+\Delta r}{r} + \beta' \frac{\Delta r}{r(r+\Delta r)} \right) \qquad (4)$$

A... $\frac{\pi l V_1 e}{6\eta Q \text{ Log } b/a}$

e... charge électrostatique de la particule (ues cgs)

$\eta$... coefficient de viscosité de l'air

$\beta'$.. constante fonction de la pression atmosphérique

r... rayon de la particule correspondant à $k_1$

$\Delta r$.. intervalle de dimensions dans lequel on étudie le pourcentage de particules piégées.

Les différentes tensions $V_1$, $V_2$, $V_3$... auxquelles est porté le fil permettent de piéger tous les ions de mobilité supérieure à $k_{11}$, $k_{12}$, $k_{13}$... Les différences d'activité obtenues sur le filtre de sortie permettent de calculer la proportion d'ions compris entre deux mobilités (donc entre deux rayons).

*A.b - Plan*

Au delà de 2 500 volts appliqués entre le fil et le cylindre du précipitateur des phénomènes d'effluves peuvent se produire à cause de l'atmosphère très humide (99 % d'humidité relative). Ces effluves peuvent perturber les mesures. Pour éviter d'utiliser des tensions trop élevées, j'ai utilisé un précipitateur électrostatique plan.

Le calcul de la mobilité limite d'un tel capteur est effectué à l'aide de la formule :

$$k_1 = \frac{2h^2 v}{VL} \qquad (5)$$

2h... distance inter-plaques (cm)

v.... vitesse à l'intérieur d'un canal (cm/s)

V.... tension inter-plaques (volts)

L.... longueur du canal (cm)

*II.2.B - Batteries de diffusion*

Lorsqu'un flux de particules s'écoule au travers des canaux, sa concentration décroît par suite de la diffusion vers les parois. Les calculs théoriques relatifs à ces pertes par diffusion ont été effectués par TOWNSEND (To-1), GORMLEY et KENNEDY (Go-2), DE MARCUS et THOMAS (De-2) et récemment par TWOMEY (Tw-1).

Les hypothèses de base du calcul sont les suivantes :

- la diffusion intervient seule ;
- le régime dans la batterie est laminaire ;
- on peut caractériser les particules par une seule valeur D ;
- la concentration en particules est constante à l'entrée de la batterie ;
- les particules frappant les parois restent collectées.

On peut alors écrire l'équation fondamentale de la diffusion :

$$D.\Delta C - \vec{V}.\vec{grad}\ C = 0 \qquad (6)$$

C... concentration des particules
D... coefficient de diffusion.

La vitesse de l'écoulement $\vec{V}$ en fonction du débit est donnée par la loi de POISEUILLE :

- Pour un cylindre $u = \frac{2Q}{\pi a^4}(a^2 - r^2)$ (7)

- Pour un rectangle $u = \frac{3Q}{8ba^3}(a^2 - x^2)$ (8)

l... longueur d'un canal
2b.. largeur du canal
2a.. distance interplaque
x... distance entre les plaques comptée à partir du plan de symétrie avec l>>b>>a

A l'aide des équations (6) et (7) ou (6) et (8), on obtient :

- Pour un cylindre en posant x = r/a :

$$\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{1}{x}\frac{\partial C}{\partial x} - \frac{2Q}{\pi D}(1 - x^2)\frac{\partial C}{\partial z} + D\frac{\partial^2 C}{\partial z^2} = 0 \qquad (9)$$

- Pour un canal rectangulaire :

$$\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{3Q}{8a^3 bD}(a^2 - x^2)\frac{\partial C}{\partial z} = 0 \qquad (10)$$

La résolution de l'une ou l'autre de ces équations donne les valeurs trouvées par les différents auteurs.

*B.a - Canaux rectangulaires*

- GORMLEY et KENNEDY :

$$\frac{n}{n_o} = 0{,}909\ e^{-1{,}885\mu} + 0{,}053\ e^{-21{,}43\mu} + \ldots \qquad (11a)$$

Une restriction justifiée par FUCHS (Fu-3) entraîne pour $\mu < 0{,}01$ où $\mu = Dl/a^2\bar{u}$ :

$$\frac{n}{n_o} = 1 - 1{,}175\mu^{2/3} + 0{,}1\mu + 0{,}0175\mu^{4/3} \qquad (11b)$$

$\bar{u}$... vitesse moyenne d'écoulement dans le canal.

- DE MARCUS

$$\frac{n}{n_o} = 0{,}915\, e^{-1{,}88\mu} + 0{,}059\, e^{-22{,}3\mu} + 0{,}026\, e^{-151{,}8\mu} \qquad (12)$$

- TWOMEY

$$\frac{n}{n_o} = 0{,}91\, e^{-3{,}77xD} + 0{,}053\, e^{-42{,}86xD} + 0{,}015\, e^{-124{,}08xD} + 0{,}007\, e^{-249{,}07xD} \qquad (13)$$

avec $x = \pi l/2Q$

Les coefficients numériques de l'équation de TWOMEY sont considérés comme plus exacts que ceux de GORMLEY et KENNEDY, car ils ont été obtenus à l'aide d'une calculatrice.

*B.b - Batteries cylindriques*

- GORMLEY et KENNEDY

$$\frac{n}{n_o} = 0{,}819\, e^{-3{,}66\mu} + 0{,}0975\, e^{-22{,}3\mu} + 0{,}0325\, e^{-57\mu} + \ldots. \qquad (14a)$$

La même restriction justifiée par FUCHS donne pour $Dl/a^2\bar{u} = \mu < 0{,}01$

$$\frac{n}{n_o} = 1 - 2{,}56\mu^{2/3} + 1{,}2\mu + 0{,}177\mu^{4/3} \qquad (14b)$$

- TOWNSEND

$$\frac{n}{n_o} = 0{,}78\, e^{-7{,}313xD} + 0{,}097\, e^{-44{,}56xD} + \ldots. \qquad (15)$$

- TWOMEY

$$\frac{n}{n_o} = 0{,}819e^{-7{,}31xD} + 0{,}0975e^{-44{,}6xD} + 0{,}0325e^{-113{,}9xD} + 0{,}0157e^{-215{,}2xD} \qquad (16)$$

avec $x = \pi l/2Q$

Empiriquement THOMAS a donné une équation :

$$\frac{n}{n_o} = 0{,}819e^{-7{,}31xD} + 0{,}097e^{-44{,}6xD} + 0{,}032e^{-114xD} + 0{,}027e^{-246xD} + 0{,}025e^{-1500xD} \qquad (17)$$

En conclusion, à partir de toutes les formules énoncées ci-dessus, le coefficient de diffusion d'un aérosol homogène ne doit pas varier lorsque varie le débit

d'air Q traversant la batterie.

II.2 - Etude des conditions relatives au régime de l'air dans les capteurs

Les équations du paragraphe précédent ne seront valables que si le régime de l'air dans les capteurs est laminaire :

- écoulement parallèle aux parois ;
- distribution parabolique des vitesses suivant la loi :

$$V = \frac{2Q}{\pi R^4} (R^2 - r^2)$$

On définit empiriquement que le profil laminaire est établi si le nombre de Reynolds (Re) est inférieur à 500 :

$$Re = \frac{2\ V_m R}{\nu} \qquad (18)$$

$V_m$... vitesse moyenne du gaz en cm/s
R.... rayon du tube en cm
$\nu$.... viscosité cinématique du gaz en cgs

Dans l'air et dans les conditions normales de température et de pression :

$$Re = \frac{8,98\ Q}{2R}$$

Q... débit en $cm^3/s$

Expérimentalement de nombreux chercheurs ont essayé de définir la valeur maximale du nombre de Reynolds. MADELAINE a tracé les profils de vitesse dans les tubes cylindriques à l'aide d'anémomètres à fil chaud (Ma-4). Pour Re<300, les profils théoriques et expérimentaux coïncident parfaitement.

SINCLAIR a visualisé avec de la fumée les régimes dans un tube de verre (Si-1). Il observe un régime laminaire pour Re < 350.

Pour les valeurs de Re < 400 on peut donc considérer que le régime est laminaire. Mais ce régime ne s'établit qu'à une certaine distance de l'entrée. Cette "longueur d'établissement" ($L_{et}$) du régime est déterminée à partir des travaux de DAVIES (Da-2) et BOUSSINEQ . Il y a 10% d'écart entre la distribution de vitesses et la distribution parabolique pour $L_{et} = 0,058\ Re.R$ (R étant le rayon du conduit).

Lors de la pénétration de l'aérosol dans un canal, il se produit des turbulences qui peuvent avoir une influence sur le dépôt des particules. FUCHS et SUTUGIN, THOMAS, MEGAW, CHAMBERLAIN étudièrent expérimentalement ce problème (Fu-2, Me-2) et pour des valeurs de Re<400 montrèrent que l'influence des turbulences sur le dépôt est négligeable.

## III. PRINCIPE DES METHODES DE MESURE

### III.1 - Détermination de la taille des particules à l'aide des batteries de diffusion

Dans le paragraphe précédent les hypothèses de base pour les batteries de diffusion indiquent que l'aérosol doit être monodispersé ; dans ce cas le coefficient de diffusion D ne doit pas varier avec le débit.

En réalité les particules en suspension sont plus ou moins polydispersées et le coefficient de diffusion (appelé coefficient de diffusion apparent Da) varie avec le débit. De nombreux auteurs se sont attachés à définir des méthodes de mesure de la polydispersion d'un mélange à l'aide de batteries de diffusion. Les méthodes que j'ai utilisées dans ce travail sont présentées succinctement dans ce paragraphe.

#### *III.1.A - Méthode exhaustive*

Elle a été proposée par POLLAK et METNIEKS (Po-4). Elle consiste à étudier la variation du coefficient de diffusion apparent Da de l'aérosol en fonction du débit Q traversant la batterie de diffusion.

En extrapolant la courbe Da (Q) vers les débits nuls, le coefficient de diffusion apparent tend vers le plus petit coefficient de diffusion des constituants du mélange. Lorsque le débit augmente, le coefficient de diffusion apparent tend vers la valeur de la moyenne pondérée des coefficients de diffusion des différents composants. On détermine les différents composants du mélange et leur abondance respective par une méthode de tirage graphique.

NOLAN et al.(No-1, No-2) tout en suggérant une autre méthode d'estimation du degré d'hétérogénéité d'un aérosol ont fait des réserves sur les méthodes exhaustives. Elles entraînent des erreurs grossières lorsque la première valeur de D est imprécise ; lorsque le débit traversant la batterie est faible, des pertes supplémentaires dans les conduits avant la batterie peuvent se produire, ainsi que des phénomènes autres que la diffusion(désintégration).FUCHS confirma lui aussi ces réserves pour une utilisation pratique de la méthode exhaustive.

#### *III.1.B - Méthode de FUCHS (Fu-2)*

Elle consiste à tracer un système de courbes $n/n_o = f(Q)$ calculé pour une distribution log-normale de l'aérosol et de les comparer avec les valeurs expérimentales de $n/n_o$.

La fonction de distribution Log-normale est définie par l'équation :

$$f(d) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\ \text{Log}\ \sigma_g}\ e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\text{Log}\ d - \text{Log}\ d_g}{\text{Log}\ \sigma_g}\right)^2}$$

$d_g$ ..... diamètre géométrique numérique
$\sigma_g$ ..... écart type géométrique

Il est nécessaire d'avoir au moins 3 valeurs expérimentales de n/no (une faible valeur, une moyenne, une forte) pour déterminer $d_g$ et $\sigma_g$ avec une bonne précision.

*III.1.C - Méthode des proportions invariables*

La méthode est basée sur la comparaison de courbes expérimentales :

$$\frac{n}{no} = f(Q)$$

donnant l'arrêt de la batterie de diffusion en fonction du débit, aux courbes théoriques correspondantes calculées pour un aérosol à plusieurs constituants en proportions variables. Il n'existe théoriquement qu'un seul mélange qui, quel que soit le débit, fait coïncider courbes expérimentales et théoriques ; c'est celui qui pour les débits considérés a ses constituants en proportions invariables. COUTURAUD (Co-2) a exploité cette méthode en supposant l'aérosol bi-dispersé. Mais la méthode s 'applique au cas d'un grand nombre de constituants. Il est alors nécessaire d'avoir l'aide d'un ordinateur.

III.2 - Détermination de la taille des particules par la mesure de la concentration en particules chargées

Il faut supposer qu'un équilibre dans la répartition des charges est établi. Si cette condition est réalisée on peut écrire :

$$\frac{N_p}{N_o} = e^{p^2e^2/2r\,KT}$$

$N_o$..... concentration en particules neutres
$N_p$..... nombre de particules portant p charges
e..... charge élémentaire (ues cgs)
K..... constante de BOLTZMAN
T..... température (° Kelvin)
r..... rayon de l'ion considéré.(cm)

En posant $y = e^2/2rKT$ et en supposant les charges uniformément réparties ($N^+=N^-$) on a :

$$\frac{N1}{N_o} = e^{-y} + e^{-4y} + e^{-9y} + \ldots = -\frac{1}{2} + \sqrt{\frac{\pi}{y}}\left(\frac{1}{2} + e^{-\pi^2/y} + e^{-4\pi^2/y} + \ldots\right)$$

Pour $r > 2.10^{-6}$cm, quand les termes exponentiels sont petits devant 1/2, on a :

$$\frac{N1}{N_o} = -\frac{1}{2} + \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\pi}{y}}$$

Soit Z la concentration totale en particules : $Z = 2N + N_o$

d'où :

$$\frac{Z}{N_o} = \sqrt{\frac{\pi}{y}} = B\sqrt{r}$$

B ..... $\sqrt{2\pi KT}/e$

La mesure simultanée de Z et de $N_o$ permet donc de connaître la valeur de r à condition toutefois d'admettre que l'équilibre des charges est établi. La figure 44 donne graphiquement la variation de $N_o/Z$ en fonction du rayon de la particule.

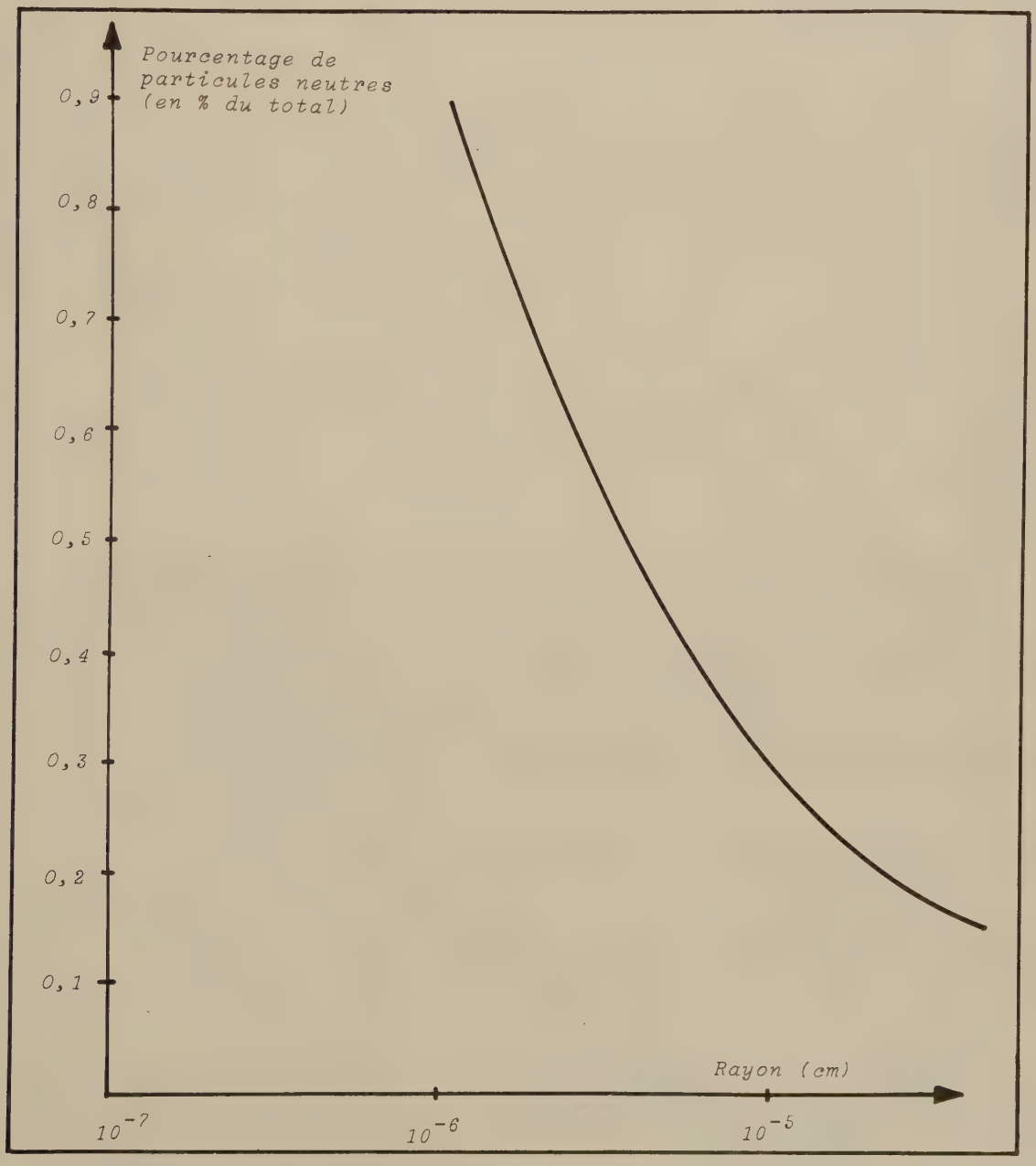



*FIGURE 44 : Courbe de variation de $N_o/Z$ en fonction du rayon de la particule (cas de l'équilibre de Boltzmann).*

III.3 - Détermination de la taille des particules chargées

Selon le potentiel appliqué sur le fil du précipitateur électrostatique ou entre les plaques du précipitateur plan des particules,de différentes mobilités sont piégées. Des expériences à différentes tensions permettent de tracer la courbe expérimentale :

$$\frac{n_o - n}{n_o} = f(v)$$

c'est-à-dire la fraction de particules piégées en fonction de la tension. Considérons maintenant comme SOILLEUX (So-1) le problème théorique : soit un groupe de particules de mobilité $k_1$ présent dans l'air aspiré. Pour un voltage interélectrodes croissant, le nombre de particules collectées (exprimé en pourcentage du nombre total de particules) croîtra linéairement (si les conditions d'établissement de régime et de charge unique sont supposées). Pour une tension $V_1$, toutes les particules de mobilité $k_1$ sont piégées et un plateau est observé pour des tensions croissantes (Figure 45). S'il existe maintenant dans l'air analysé un autre groupe de particules de mobilité $k_2$ plus faible que $k_1$ le même raisonnement peut être tenu ; on obtiendra un plateau à partir d'une

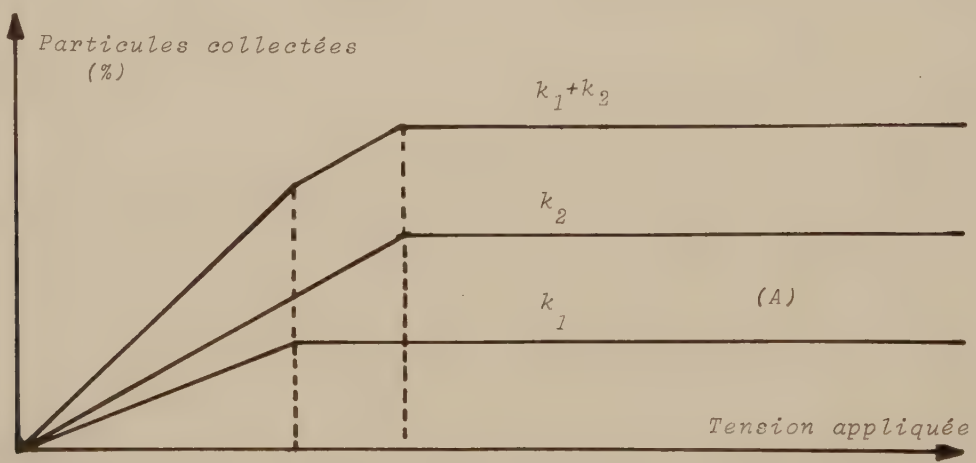
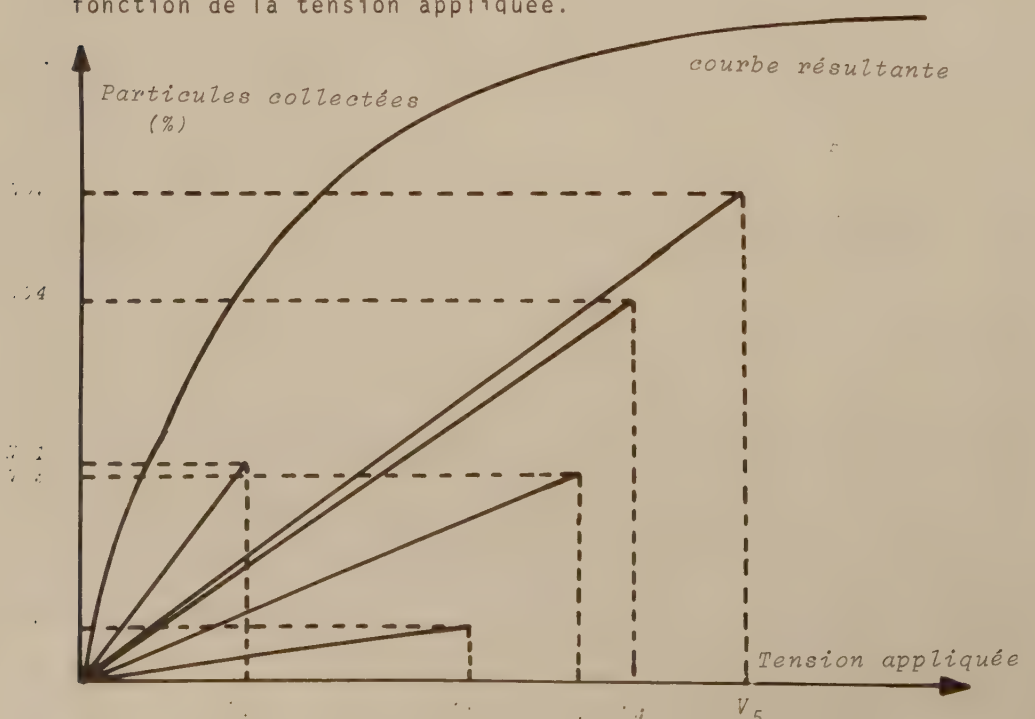



FIGURE 45 : Pourcentage théorique de particules collectées en fonction de la tension appliquée.



valeur $V_2$ supérieure à $V_1$ (figure 45A). La combinaison des deux groupes de mobilités conduit à la courbe résultante. On peut étendre l'argumentation ci-dessus à un plus grand nombre de mobilité donnant une courbe d'arrêt du précipitateur en fonction de la tension quasi-continue (figure 45B). Soit donc à déterminer les pourcentages $No_1$, $No_2$, $No_3$... des différents constituants qui sommés donnent la courbe de la figure 45B. Pour chaque tension on peut écrire :

$$N_1 = NO_1 + V_1 \left(\frac{NO_2}{V_2} + \frac{NO_3}{V_3} + \frac{NO_4}{V_4} + \frac{NO_5}{V_5}\right)$$

$$N_2 = NO_1 + NO_2 + V_2 \left(+ \frac{NO_3}{V_3} + \frac{NO_4}{V_4} + \frac{NO_5}{V_5}\right)$$

---

et $$N_5 = NO_1 + NO_2 + NO_3 + NO_4 + NO_5$$

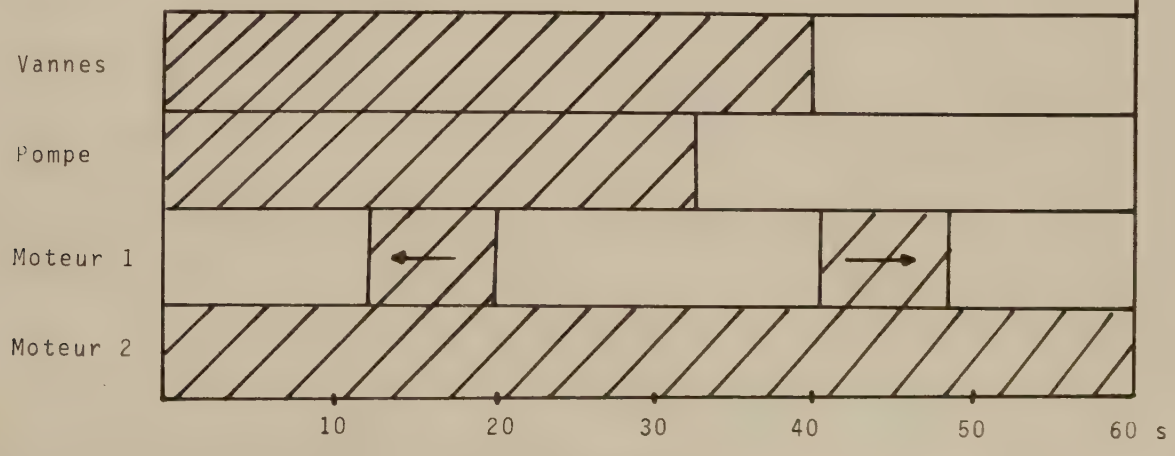
Le pourcentage total de particules à une tension donnée peut être exprimé en fonction des pourcentages des particules de différentes mobilités. On obtient ainsi n équations à n inconnues ($No_1$, $No_2$..... $No_n$) que l'on peut résoudre par des procédés numériques.

III.4 - Limites des méthodes

*III.4.A - Prélèvement*

L'utilisation des compteurs de noyaux de condensation imposent deux contraintes :

- un débit de prélèvement minimal de 60 ± 5 $cm^3/s$ ;
- utilisation d'un débit annexe car le débit d'aspiration du compteur de noyaux de condensation est discontinu (tableau 10)




*Les parties hachurées correspondent au temps de marche.*

*III.4.B - Utilisation des précipitateurs électrostatiques (1)*

La connaissance de la proportion de particules chargées est extrêmement importante dans l'étude de la composition des nuages particulaires et du comportement de

*(1) Ce paragraphe a été rédigé en collaboration avec DUPORT P. (STEPPA Fanay).*

leurs constituants (fixation, rétention, élimination...). Les méthodes pour déterminer cette proportion sont peu nombreuses et sont toutes basées sur la précipitation électrostatique (Ma-4, Lo-3, Re-1,).

Son utilisation entraîne des difficultés d'ordre à la fois pratique et théorique :

- sur le plan pratique des mesures parfaites nécessiteraient des tensions élevées stables, des isolants parfaits, de bons états de surfaces. En fait, sur le terrain aucune de ces conditions ne peut entièrement être réalisée (en particulier les H.T. utilisées sont prévues pour ne pas débiter, de légères fuites perturbent leur stabilité);

- du point de vue théorique, il y a toujours des difficultés à interpréter les résultats : des charges multiples peuvent fausser les mesures.

Dans le cadre de l'étude de l'atmosphère minière de nombreuses mesures de la proportion des particules chargées (radioactives ou non) ont été faites. On a noté une dispersion importante dans les résultats expérimentaux (Ch-5, Du-5). Il faut cependant remarquer que dans une mine on peut considérer que chaque expérience est un cas particulier en raison des conditions très variables : concentration et taille des noyaux de condensation, concentration en radon, état d'équilibre...

Les résultats sont donc difficilement comparables entre eux. Un des moyens de surmonter ces difficultés serait de maîtriser individuellement chacun de ces paramètres : la mise en oeuvre de la mine expérimentale de Tennelles doit permettre ce contrôle.

De façon pratique on a observé des courants de fuite sur les précipitateurs (quelque soit le précipitateur utilisé). Deux types de courant de fuite peuvent être envisagés :
- un courant de décharge dans l'air obtenu à partir d'une tension critique et fonction de la construction du précipitateur;
- un courant ohmique variant avec la tension appliquée dû principalement à la résistance non infinie des isolants.

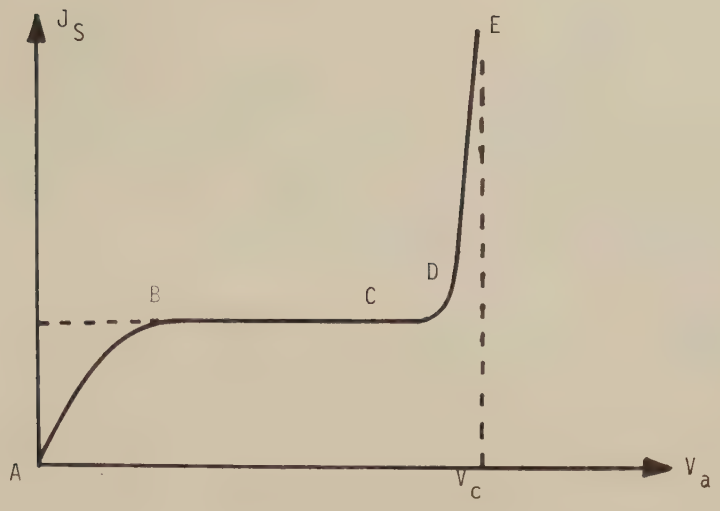
D'autre part l'utilisation des capteurs électrostatiques en atmosphère fortement radioactive peut (par accumulation importante de particules ionisantes sur les armatures du condensateur) perturber la composition du nuage particulaire dans certaines conditions.

### *B.a - Courants de fuite*

- Courant de décharge

. Aspect théorique

Soit un condensateur idéal constitué par deux plaques séparées par une distance d et plongées dans un gaz à la pression p. Sa caractéristique courant-tension est schématisée ci-après.




Lorsque $V_a$ est faible, les ions de chaque signe sont attirés vers l'électrode de signe contraire avec une vitesse déterminée par leur mobilité. Un appareil de mesure placé dans le circuit indique le passage d'un courant $J_S$. Au fur et à mesure que $V_a$ croit, $J_S$ croit aussi, mais de moins en moins vite (région A B). Il tend vers sa valeur de saturation qui est fonction de d et de $\nu = \alpha n^2$ (recombinaison), et non plus de V.

$$j_s = ed\nu$$

La partie CD de la courbe correspond au phénomène d'ionisation du gaz par les électrons primaires. En effet lorsque $V_a$ est supérieur ou égal au potentiel d'ionisation $V_i$ du gaz, les électrons produits peuvent acquérir dans le champ électrique une énergie suffisante pour ioniser à leur tour les molécules du gaz. Le même raisonnement peut être fait pour les électrons qui en résultent. Cela entraîne une augmentation rapide du courant $J_S$.

En augmentant encore la tension, il y a multiplication des charges avec effets secondaires : c'est la décharge ou "claquage". En géométrie fil-cylindre elle est dénommée décharge en couronne à cause de la luminescence caractéristique concentrée autour du fil. Le seuil de claquage (ou seuil de TOWNSEND ) dépend de la nature du gaz, des électrodes, de leurs polarités respectives, de la pression....

Les considérations précédentes, valables pour un champ uniforme, peuvent être étendues au cas de champ non uniforme (précipitateur fil-cylindre, point-plan, etc...). La différence de potentiel entre le fil et le cylindre est donnée en fonction du champ électrique $E_F$ à la surface du fil F de rayon "a" par la relation :

$$V = \frac{E_F}{\varepsilon} a \operatorname{Log} \frac{b}{a}$$

$\varepsilon$.... permittivité = 1,00059 pour l'air sec
= 1,0126 pour la vapeur d'eau.

On définit la condition de claquage sur $E_F$ plutôt que sur V car $E_F$ est indépendant des autres paramètres.

PEEL donne la condition empirique (pour une couronne négative) :

$$(E_F)_C = 31\ m\delta\ (1 + \frac{0,308}{\sqrt{\delta a}})\ \ KV/cm$$

m... coefficient dépendant de l'état de surface du fil (entre 0,6 et 1)
$\delta$... = 1 à T.P.N.

Expérimentalement on observe une différence entre les tensions de claquage pour les couronnes positives et négatives.

Dans notre cas : b = 1,7 cm
a = 1,5 $10^{-2}$ cm

$$V_D = 7700 \text{ Volts}$$

On remarque que le seuil de TOWNSEND augmente très rapidement avec le rayon de l'électrode axiale.

Pour des tensions très légèrement inférieures à $E_C$, il peut y avoir formation intermittente de la couronne.

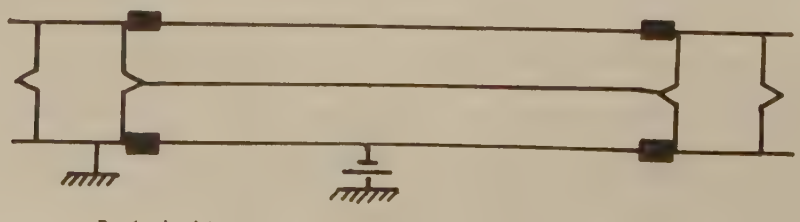
L'influence de la vapeur d'eau a été discutée par LOEB (Lo-5), il indique qu'elle n'agit pas ou très peu sur le seuil de claquage, mais seulement sur le développement des streamers.

. Aspect expérimental

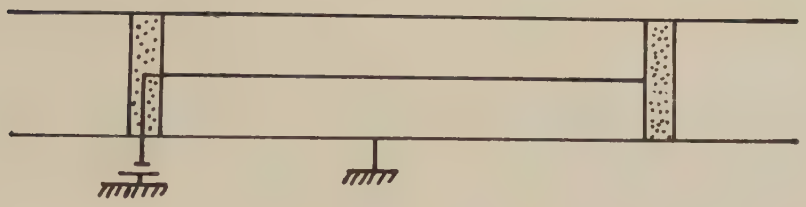
Les caractéristiques I = f(V) de nos précipitateurs ont été tracées en laboratoire (jusqu'à 5000 volts) et en mine (jusqu'à 3000 volts) (Du-1). Toutes les expériences ont été faites avec une électrode axiale de 3/10 mm. Il n'a été noté à aucun moment des phénomènes multiplicatifs. Nous avons étudié à l'oscilloscope le courant de fuite global de nos précipitateurs et nous n'avons observé aucune perturbation jusqu'à une tension de 4700 volts dans l'air du laboratoire. Au-delà quelques avalanches non entretenues (visualisées sous la forme de brèves impulsions) apparaissent. Des expériences identiques ont été faites en mine avec un précipitateur à anneaux de garde (cf. schéma suivant). Des décharges non entretenues ne sont apparues qu'au-delà de 5500 Volts.

- Courant ohmique

Les résultats théoriques et expérimentaux du paragraphe précédent montrent que les courants de fuite sont surtout dus aux isolants. Cela est confirmé par le fait que selon les précipitateurs on obtient des courants de fuite différents : inférieurs en



Précipitateur à anneaux de garde



Précipitateur à ailettes

général à 0,1µA (pour une tension de 3000 volts) pour les précipitateurs à anneaux de garde (type WACHFELNER) présentant un bon isolement et pouvant aller jusqu'à quelques dizaines de µA pour les précipitateurs à ailettes.

*B.b - Phénomènes d'ionisation radioactive*

- Aspect théorique

Soit un nuage particulaire de composition :

- A ($p/cm^3$) particules neutres ;
- B ($p/cm^3$) particules chargées + (unitaires ou multiples) ;
- C ($p/cm^3$) particules chargées - (unitaires ou multiples).

$A + B + C = N$ = concentration en particules.

Le but du précipitateur électrostatique étant d'étudier les parties B et C du nuage particulaire, il ne doit avoir aucune influence sur la partie A. C'est ce que l'on réalise en atmosphère libre (Ma-4, Re-1). Mais en mine dans certaines conditions il peut en être autrement. En effet une accumulation importante de produits ionisants sur les parois du capteur peut se produire. Cela entraîne la création d'un grand nombre de petits ions qui peuvent modifier l'état de charge initial de l'aérosol.

Soit n la concentration en petits ions (+ ou -) ($p/cm^3$) créés par l'ionisation radioactive ; N la concentration en noyaux de condensation de rayon moyen $r_M$.

La disparition en fonction du temps des petits ions par fixation sur les noyaux s'écrit :

$$\frac{dn}{dt} = - \beta_0 n N$$

$\beta_0$... coefficient de fixation des petits ions sur les noyaux de rayon moyen $r_M$.

A l'instant t, (si à t=0, $n = n_0$) :

$$n = n_0 \, e^{-\beta_0 N t}$$

Les petits ions peuvent aussi disparaître par recombinaison selon la loi :

$$\frac{dn}{dt} = - \alpha n^+ n^-$$

- Aspect expérimental

Pour un temps de séjour de 15 secondes, un rayon moyen de $6.10^{-6}$cm et une con-

| Géométrie | Nombre de canaux | Dimension d'un canal(cm) | Longueur (cm) | $\frac{k_1 V}{Q}$ | Tensions (Volts) | | Débits ($cm^3$ /s) | | $k_1$ Mobilité-limite ($cm^2/s$) | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | | Min. | Max. | Min. | Max. | Min. | Max. |
| Fil cylindre | 1 | $\phi_e$ = 0,03<br>$\phi_s$ = 3,4 | 40 | $1,9.10^{-2}$ | 10 | 3000 | 5 | 450 | $3,2.10^{-5}$ | 0,85 |
| Plan † | 12 | 1 | 40 | $1,04.10^{-5}$ | 10 | 3000 | 5 | 450 | $1,7.10^{-7}$ | $4,7.10^{-3}$ |

Précipitateurs électrostatiques

| Géométrie | Nombre de canaux | Dimension d'un canal(cm) | Longueur (cm) | Volume total ($cm^3$) | Débits ($cm^3/s$) | | Dl($cm^2/s/V$) *(1)* | | $R_L$(cm) *(2)* | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | | Min. | Max. | Min. | Max. | Min. | Max. |
| à tubes | 60 | $\phi$ = 0,18 | 100 | 51 | 50 | 833 | $25.10^{-4}$ | $5.10^{-2}$ | $6.10^{-8}$ | $8.10^{-7}$ |
| à tubes | 60 | $\phi$ = 0,18 | 200 | 102 | 50 | 833 | $9.10^{-4}$ | $2,5.10^{-2}$ | $9.10^{-8}$ | $4.10^{-7}$ |
| à tubes | 1 | $\phi$ = 3,4 | 60 | 546 | 50 | 833 | | | | |
| à plaques †† | 12 | l = 30<br>h = 1 | 40 | 14400 | 50 | 833 | $2.10^{-3}$ | $4.10^{-2}$ | $8.10^{-8}$ | $2,5.10^{-7}$ |
| à plaques | 200 | l = 10<br>h = 0,06 | 35 | 4200 | 50 | 833 | $1,5.10^{-5}$ | $2,5.10^{-4}$ | $8.10^{-7}$ | $3.10^{-6}$ |

Batteries de diffusion

*† est identique à ††*
*(1) $D_L$ = coefficient de diffusion limite correspondant à un pouvoir d'arrêt de 95 %*
*(2) $R_L$ = rayon limite correspondant.*

TABLEAU 11

centration en noyaux de condensation de $5.10^3$ p/cm$^3$ on obtient $n/n_o = 0,86$. Ainsi s'il y a création importante de petits ions un nombre non négligeable de ceux-ci se fixera sur les noyaux de condensation pendant leur séjour dans le précipitateur.

Les mesures sur les aérosols radioactifs sont généralement longues (supérieures à 2 heures) et par ce fait il peut y avoir une accumulation plus ou moins importante selon la durée de l'expérience.

III.5 - Dispositifs expérimentaux

Les caractéristiques des divers capteurs que j'ai utilisés sont rassemblées dans le tableau 11. Deux séries de batteries de diffusion sont employées. Une batterie de diffusion de 200 plaques parallèles séparées par 0,06 cm, pour étudier les grosses particules de coefficient de diffusion $D < 10^4$ cm$^2$/s (rayon $> 1,2\ 10^{-6}$ cm$^2$/s). Pour les particules de coefficient de diffusion supérieur à $10^{-4}$ cm$^2$/s, je me suis servi des batteries à canaux circulaires.

III.6 - Appareillages divers

Quelques paramètres importants (pression, humidité, température, ventilation) ont été systématiquement mesurés durant nos campagnes de mesures :

- la pression à l'aide d'un appareil Barolux de type classique sensible à des variations de 0,2 millimètres de mercure ;
- l'humidité avec un hygromètre à sondes, il permet de faire des mesures d'humidité relative de 1,5 % à 90 % avec une précision de 1,5 %. Son principe est : mesure de variation de résistance électrique d'un métal recouvert d'un film hygroscopique ;
- la température grâce à un thermomètre à mercure sensible à 0,5°C;
- la ventilation est étudiée à l'aide d'un anémomètre à ailettes (sensible à 15 cm/s) relié à un enregistreur à zéro médian. Ainsi peuvent être enregistré à la fois le sens et l'intensité de la ventilation.

-:-:-:-:-:-:-

# CHAPITRE II

## CONSIDERATIONS THEORIQUES.

Les caractéristiques physiques des aérosols présents dans l'air d'une mine d'uranium sont fonction de nombreux paramètres, par exemple : la concentration des noyaux de condensation en un endroit dépend du mode de formation, du lieu de formation et du trajet emprunté par la masse d'air pour parvenir à cet endroit ; ou encore l'état de charge des particules est fonction du mode de formation, du temps de séjour de l'air et des autres constituants de l'atmosphère.

Avant donc de présenter les résultats expérimentaux que j'ai obtenus il m'a semblé nécessaire de dresser le bilan théorique des effets des divers paramètres et les conditions d'existence des divers constituants miniers.

### I. PARTICULES ULTRAFINES

#### I.1 - Définitions

Les travaux de CHAMBERLAIN ont conduit à définir les particules ultrafines comme étant des particules de coefficient de diffusion de $5{,}4.10^{-2}$ $cm^2/s$ ce qui correspond pour des particules chargées à une mobilité de l'ordre de 2,4 $cm^2/s/V$. D'après les mesures de HUERTAS (Hu-1), le temps de vie des ions d'une telle mobilité serait, en air filtré, de 0,5 secondes pour une concentration en radon de $4.10^{-10}$ Ci/l. Leur présence dans la mine est donc peu probable. Pour notre part nous appellerons :

- ions ultrafins : les particules chargées dont le coefficient de diffusion est compris entre $10^{-2}$ et $5.10^{-2}$ $cm^2/s$, c'est-à-dire de mobilité comprise entre 0,4 et 2 $cm^2/s/V$ (rayon compris entre 2 et 10 Å) ;

- particules neutres ultrafines : les particules dont le coefficient de diffusion est compris entre $10^{-2}$ et $10^{-1}$ $cm^2/s$ (rayon compris entre 3 et 10 Å).

#### I.2 - Conditions d'existence

Nous pouvons calculer théoriquement le pourcentage d'activité existant sous forme ultrafine. Ecrivons les équations d'équilibre des petits ions et des particules neutres ultrafines dans le cas du RaA (les équations sont identiques pour le RaB et le RaC).

$$\frac{dn_A^+}{dt} = q_A - n_A^+ (\alpha n^- + \beta_a + \lambda_A) = 0 \qquad (14)$$

$$\frac{dn_A^\circ}{dt} = \alpha n_A^+ n^- - n_A^\circ (2\alpha_o n^- + \beta_b + \lambda_A) = 0 \qquad (15)$$

$q_A = \lambda_R Q_R$... nombre d'atomes de RaA apparaissant par $cm^3$ et par seconde,
$n$ et $n_A$..... respectivement les concentrations en petits ions normaux ordinaires et radioactifs (indices + ou - pour les chargés, o pour les neutres)
$\beta_a$..... fixation du RaA chargé sur les noyaux chargés et neutres
$\beta_b$..... fixation du RaA neutre sur les noyaux chargés et neutres.

En première approximation nous écrivons :

$$n^+ = n^- = K\, C_R$$

K..... constante
$C_R$..... concentration en radon (Ci/l)
$\alpha$ et $\alpha_o$.. coefficients de fixation des petits ions ordinaires sur les atomes de RaA (respectivement chargés ($\alpha$) ou neutres ($\alpha_o$))

Nous prendrons $\alpha = 1{,}6\ 10^{-6}\ cm^3/s$

$\alpha_o = 10^{-9} cm^3/s$ si nous admettons qu'il s'agit de la coagulation de particules de quelques $10^{-7}$cm de rayon.

Pour un rayon moyen de 3 à $4.10^{-6}$cm, on peut écrire :

$$\beta_a = \beta_b = \beta_o N = 6.10^{-7}\ N$$

De (14) et (15), il vient :

$$n_A^+ = \frac{q_A}{\alpha n^- + \beta_a + \lambda_A}$$

$$N_A = \frac{n_A^\circ}{n_A^+} = \frac{\alpha n^-}{2\alpha_o n^- + \beta_b + \lambda_A}$$

La fraction d'activité par rapport à l'activité $\alpha$ totale (R$\alpha$) existant sous forme ultrafine s'écrit :

$$f^+ = \frac{\lambda_A n_A^+}{R\alpha}$$

or : $R_\alpha = \lambda_A Q_A + \lambda_C Q_C = \lambda_A Q_A \left(1 + \frac{f_C}{f_A}\right)$

donc :

$$f^+ = \frac{\lambda_A}{(f_A+f_C)(\alpha n^- + \beta_a + \lambda_A)}$$

pour les ions.

$$f^\circ = f^+ N_A$$

pour les particules neutres.

L'activité $\alpha$ totale existant sous forme ultrafine, s'écrit enfin :

$$f = f^+ + f^\circ = \frac{\lambda_A}{(f_A+f_C)(\alpha n^- + \beta_a + \lambda_A)} \left(\frac{2\alpha_o n^- + \beta_b + \lambda_A + \alpha n^-}{2\alpha_o n^- + \beta_b + \lambda_A}\right) \qquad (16)$$

Lorsque $2\alpha_o n^-$ est négligeable devant $\beta_b + \lambda_A$, f devient indépendant de $n^-$ donc de la concentration en radon :

$$f = \frac{\lambda_A}{(f_A+f_C)(\beta_b+\lambda_A)} = \frac{\lambda_A}{K(\beta_b+\lambda_A)}$$

J'ai tracé les variations théoriques de $f^+$ et $f^\circ$ en fonction de la concentration en radon pour différentes valeurs de N, (figure 46).

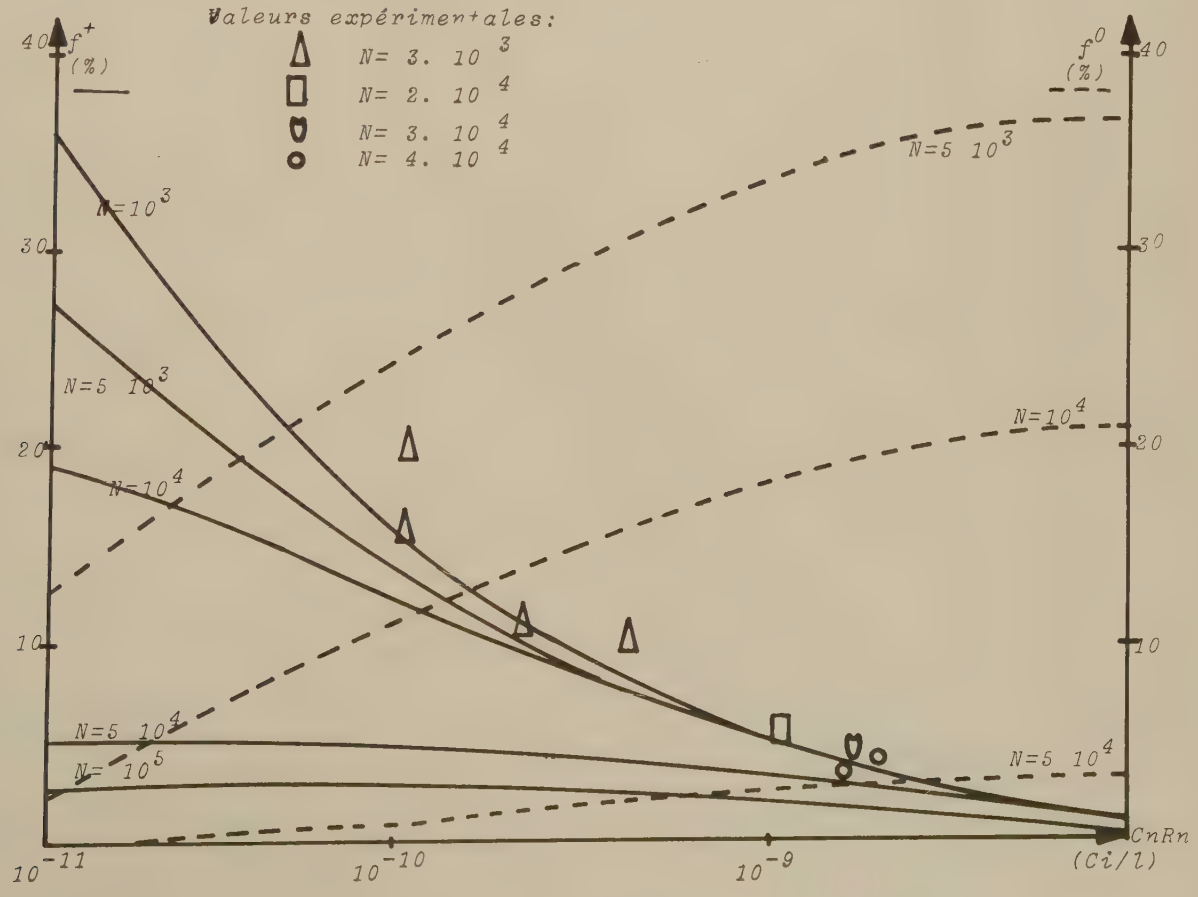



*FIGURE 46 : Courbes théoriques des variations de $f^+$ et $f^\circ$ en fonction de la concentration en radon et en noyaux de condensation.*

I.3 - Temps de vie

On peut définir le temps de vie des particules ultrafines par le temps moyen s'écoulant entre leur apparition et leur fixation sur un noyau de condensation.

On peut écrire : $$\tau = \frac{1}{\beta_b Z}$$

$\beta_o$... coefficient de fixation des particules ultrafines sur les noyaux de condensation de rayon moyen $r_M$

Z.... nombre total de noyaux de condensation de rayon $r_M$

II. NOYAUX DE CONDENSATION

Les paramètres affectant la concentration et les caractéristiques des aérosols miniers sont essentiellement : la sédimentation, la diffusion, la coagulation et le dépôt sur les parois. J'étudierai successivement ces différents phénomènes.

II.1 - Sédimentation

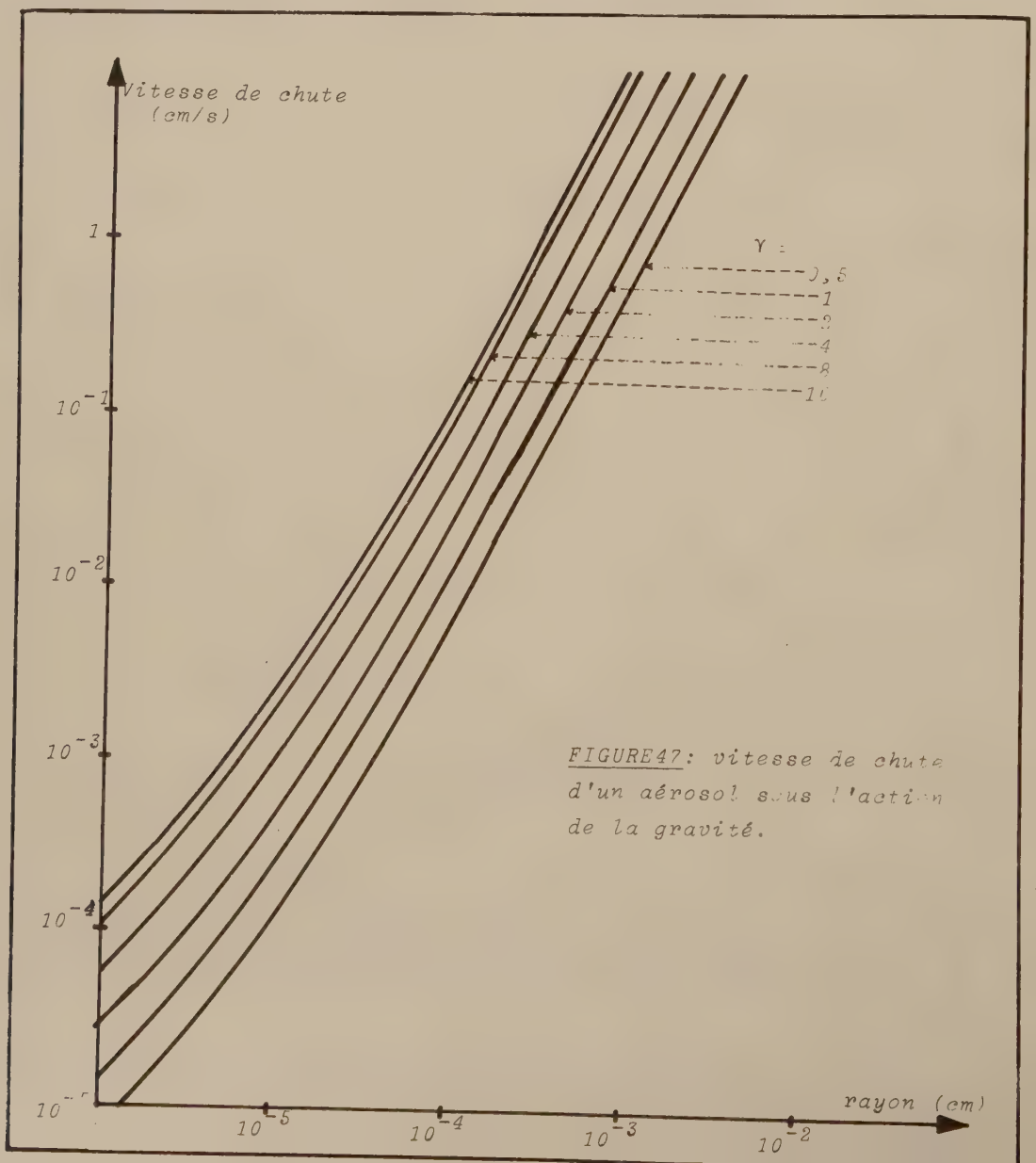



FIGURE47: vitesse de chute d'un aérosol sous l'action de la gravité.

$$\frac{n}{n_o} = 4 \sum_{\nu=1}^{\infty} \frac{1}{\beta_\nu^2} e^{-D\beta_\nu^2 t/R^2} \qquad (19)$$

$\beta_1^2$, $\beta_2^2$ ... sont les carrés des zéros des fonctions de BESSEL de premier ordre.

$$\beta_1^2 = 5,784 \quad ; \quad \beta_2^2 = 30,47 \ ;$$

$$\beta_3^2 = 74,89 \quad ; \quad \beta_3^2 = 132,8$$

D... coefficient de diffusion des particules ($cm^2/s$)
R... rayon ou demi-hauteur des galeries (cm)

L'influence de la diffusion ordinaire est très faible et se limite aux faibles dimensions.

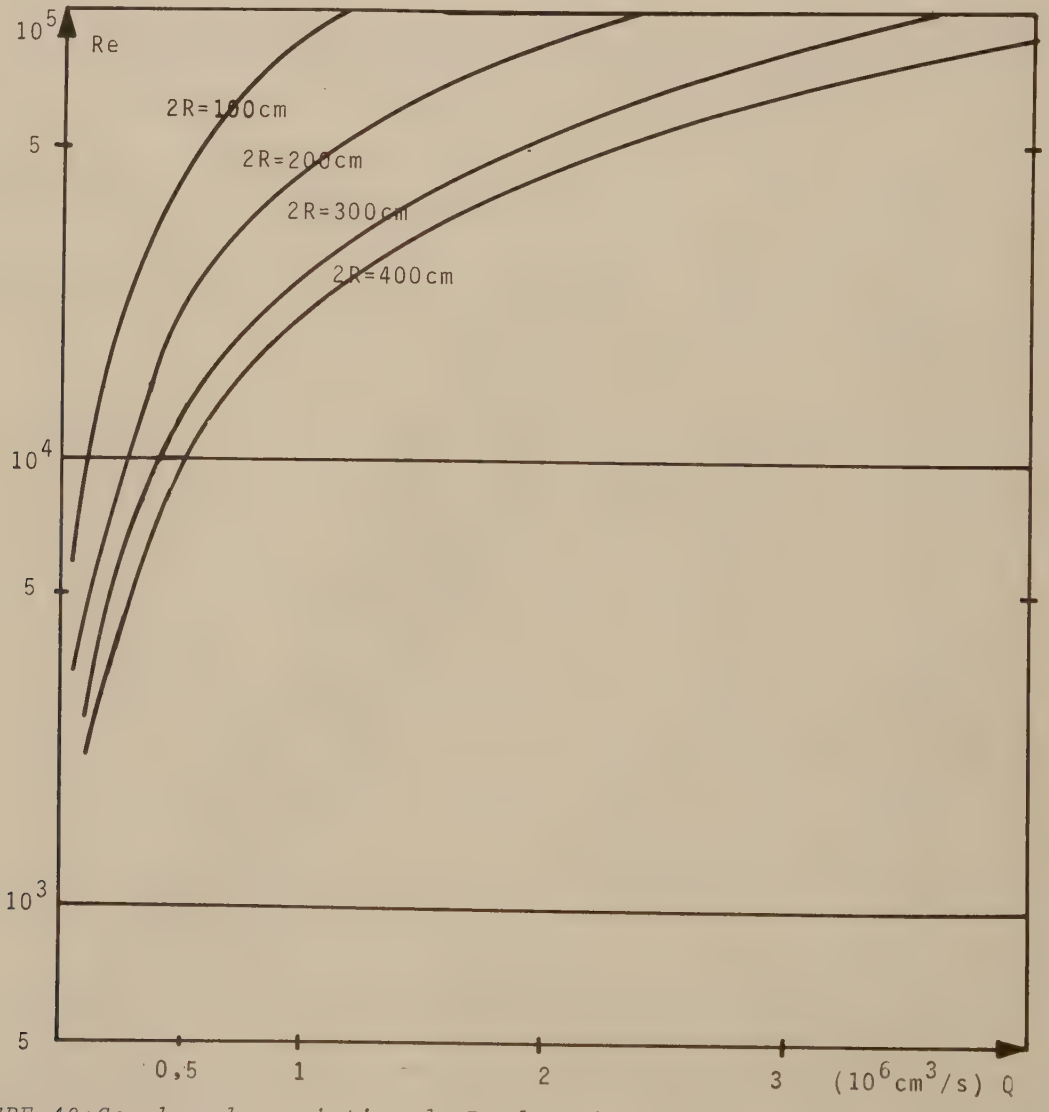



*FIGURE 48: Courbes de variation de Re dans les galeries de mine en fonction du débit de ventilation pour différents diamètre des galeries (2R)*

En 10 heures la concentration en particules de 5 $10^{-8}$cm diminue de 51% et celles de $4.10^{-7}$cm de 10 %.

II.3 - Coagulation

*II.3.A - Coagulation brownienne*

Je peux écrire que le changement en concentration $n_h$ de particules ayant un rayon $a_h$ se traduit par (La-2) :

$$\frac{\partial n_h}{\partial t} = \frac{KT}{3\eta} \int_{a_o}^{a_{h-o}} (a_i+a_{h-i}) \left\{ \frac{1}{a_i}\left(1+\frac{A_i l}{a_i}\right) + \frac{1}{a_{h-i}}\left(1+\frac{A_{h-i} l}{a_{h-i}}\right) \right\} \left(\frac{a_h}{a_{h-i}}\right)^2 n_i n_{h-i} da_i$$

$$- \frac{2KT}{3\eta} \int_{a_o}^{a_h} (a_h+a_i) \left\{ \frac{1}{a_h}\left(1+\frac{A_h l}{a_h}\right) + \frac{1}{a_i}\left(1+\frac{A_i l}{a_i}\right) \right\} n_i n_h \, da_i \qquad (20)$$

Le premier terme exprime le fait que les particules de rayon $a_h$ sont obtenues par coalescence de particules de rayons $a_i$ et $a_{h-i}$. Le second explicite la perte des particules de rayon $a_h$ par coalescence avec celles de rayon $a_i$ ;

$A_i$... correction de STOKES-CUNNIMGHAM
l.... libre parcours moyen du gaz
K.... constante de BOLTZMAN
T.... température en O (°Kelvin)
$\eta$.... viscosité du gaz (poise)

L'équation est résoluble par la méthode des différences finies (Wi-1) ; le temps s'exprime en temps de coagulation $\tau$ ($\tau = \frac{t}{T}$).

Pour étudier les influences des différents facteurs, il est nécessaire de choisir une distribution en taille initiale. La distribution log-normale est très souvent utilisée pour représenter des spectres de taille de particules. Choisissons (Hu-2) la distribution log-normale d'ordre zéro, soit :

$$f_o(a) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_o \, a_M} \frac{e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\text{Log } a_M - \text{Log } a}{\sigma_o}\right)^2}}{e^{\sigma_o^2/2}}$$

$a_M$... mode
$\sigma$.... déviation standard
$\sigma_o$... pour une distribution assez étroite se confond avec le coefficient de variance soit : $\sigma_o \# \sigma/a_M$

La coagulation brownienne se traduit par :

- une extension du spectre granulométrique en fonction du temps vers les fortes valeurs du rayon (figure 49) ;

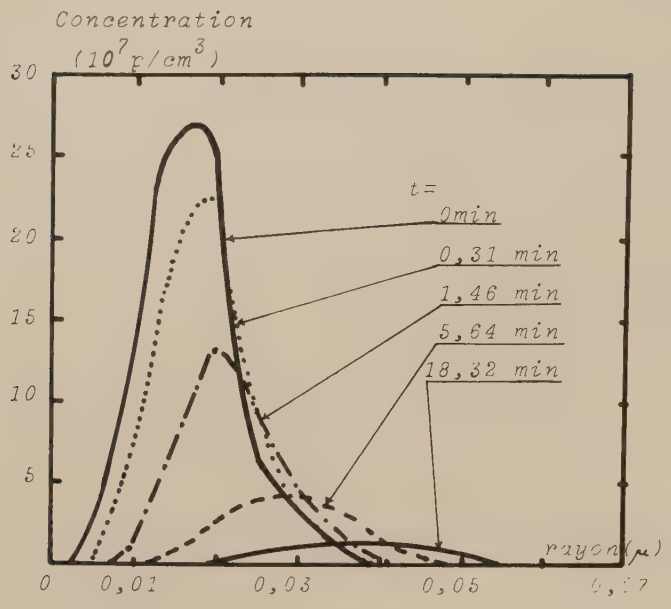



FIGURE 49 : Variation de la distribution granulométrique d'un aérosol en fonction du temps.

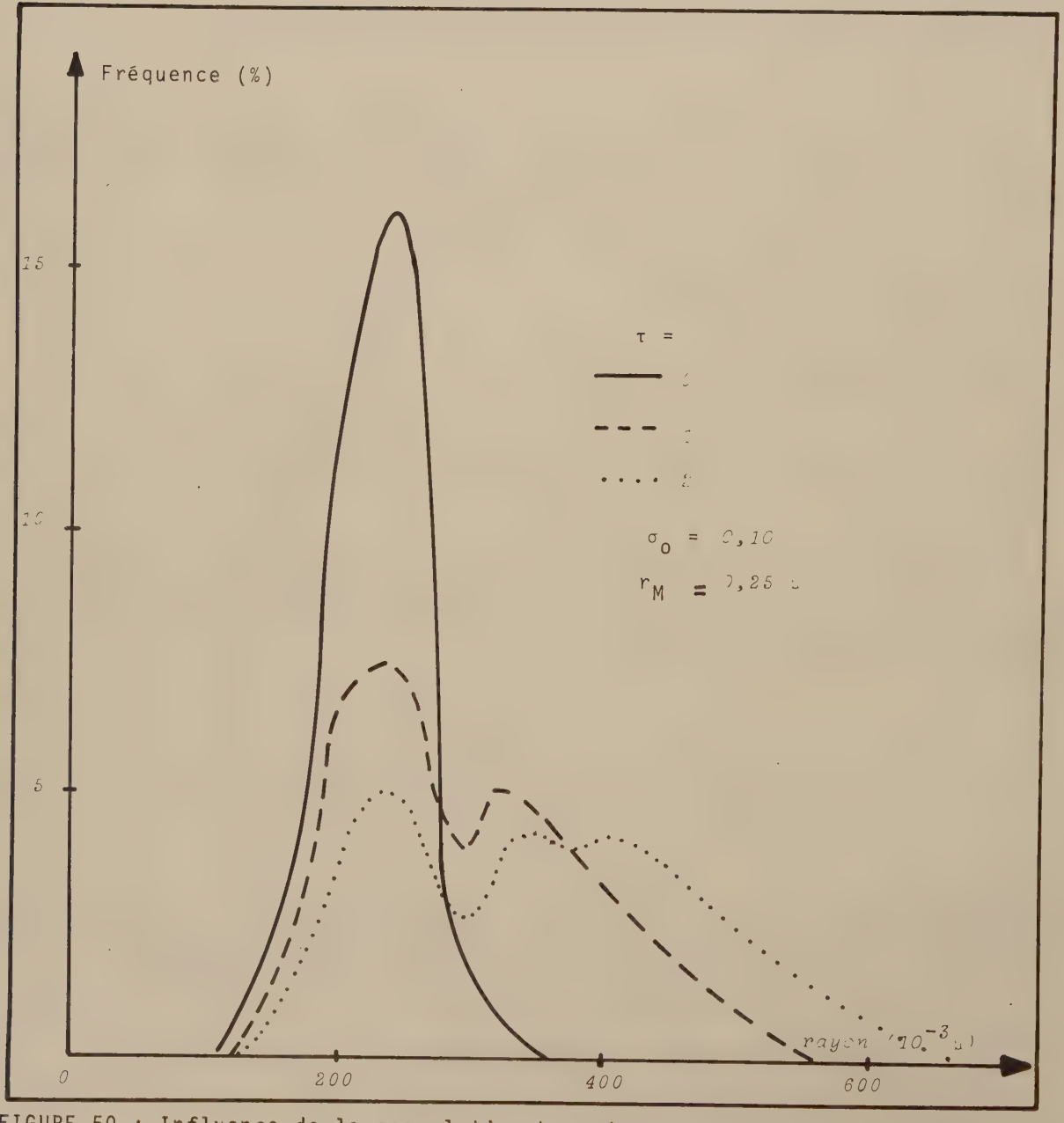



FIGURE 50 : Influence de la coagulation brownienne sur la distribution granulométrique d'un aérosol.

- un système très polydispersé coagule rapidement ;
- pour un système étroit ($\sigma$ faible) apparaissent un 2°, 3°, 4° mode correspondant à la coalescence de 2, 3,4 particules initiales (ce fait n'apparaît pas pour un système polydispersé) (figure 50).

### *II.3.B - Influence d'un gradient de vitesse (coagulation gradiente)*

Considérons des particules entraînées dans un flux d'air laminaire. A cause du gradient transverse des vitesses, les particules qui suivent différentes lignes du flux se meuvent à des vitesses différentes. En conséquence deux particules, dont la distance entre les lignes de flux sur lesquelles elles se trouvent est inférieure à la somme de leur rayon, coalescent.

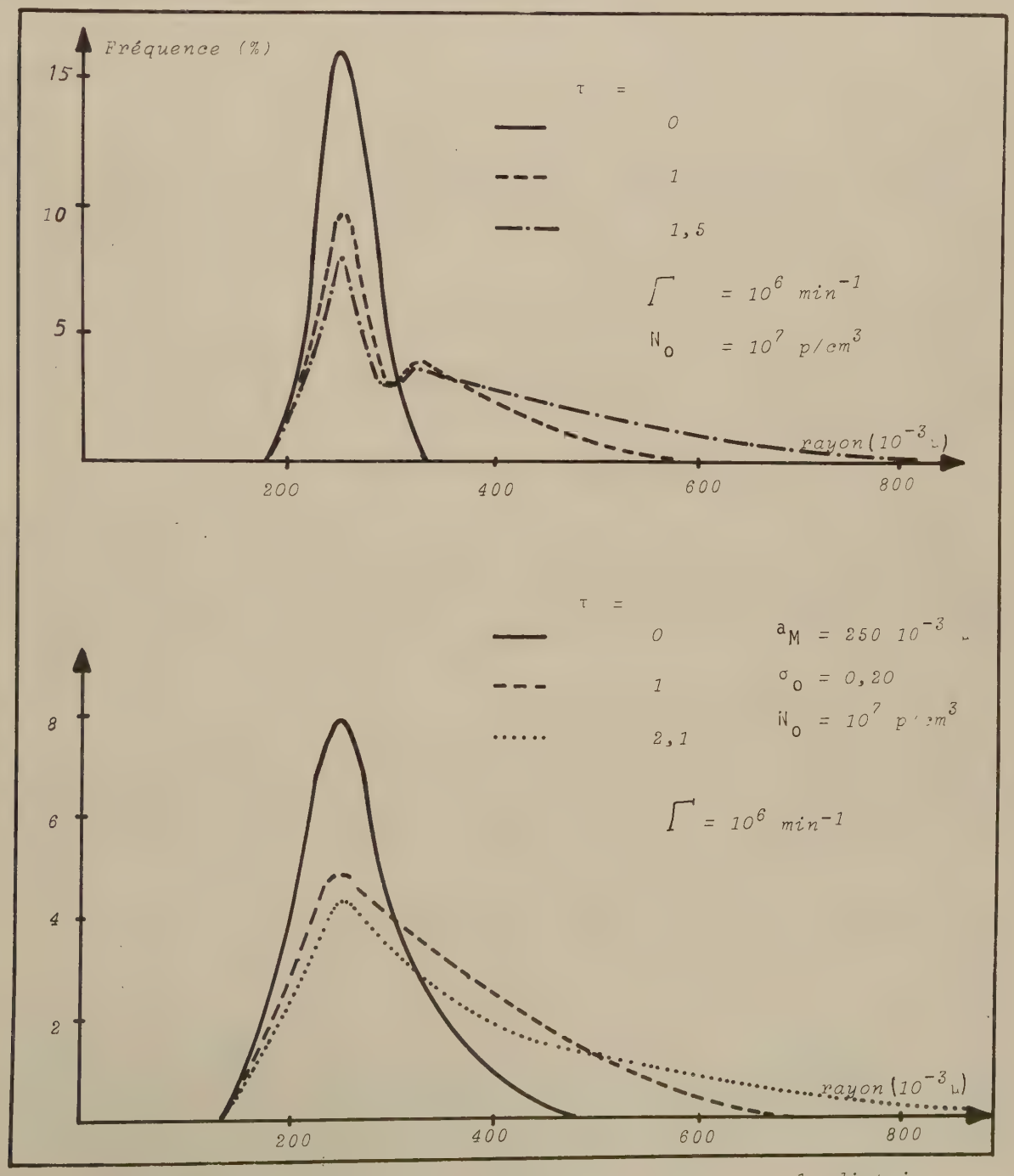



*FIGURE 51 : Influence de la coagulation gradiente sur la distribution granulométrique.*

L'efficacité de collision $J_{ij}$ entre deux particules de rayon $a_i$ et $a_j$ obéit à la relation :

$$J_{ij} = \frac{4}{3}\Gamma n_i n_j (a_i+a_j)^3 \qquad \text{(Sm-2)}$$

$\Gamma$ .... gradient de vitesse.

Le taux de coagulation sous l'influence du gradient de vitesse s'écrit :

$$\frac{\partial n_h}{\partial t} = \frac{2}{3}\Gamma\left[\int_{a_o}^{a_{h-o}} n_i n_{h-i} (a_i+a_{h-i})^3 \left(\frac{a_h}{a_{h-i}}\right) da_i - 2\int_{a_o}^{a_\infty} (a_i+a_h)^3 n_i n_h \, da_i\right] \qquad (21)$$

L'hypothèse simplificatrice que $\Gamma$ est constant est introduite pour permettre une résolution de l'équation sans système de références. Comme le taux de coagulation est proportionnel au cube de la somme des rayons des particules, un système polydispersé composé de grosses particules doit coaguler plus rapidement qu'un système comprenant surtout des petites. Deux exemples de coagulation sont donnés sur la figure 51 en fonction du temps de coagulation $\tau$.

($\tau = t/T$) pour $\tau = 1$ $t = T$ = période.

De la même façon que la coagulation brownienne la polydispersité d'un aérosol accroît le taux de coagulation gradiente.

*II.3.C - Coagulation brownienne + gradiente*

On peut supposer que les effets des deux coagulations sont séparables et additifs. La figure 52 donne la variation de T (c'est-à-dire $\tau = 1$) en fonction de $\Gamma$ pour la coagulation gradiente seule et superposée à la coagulation brownienne. On note que l'influence de la coagulation gradiente peut être négligée pour $\Gamma < 10^4$ min$^{-1}$.

*II.3.D - Coagulation turbulente*

Pour un nombre de Reynolds Re > 2000 le régime d'écoulement de l'air devient turbulent et les collisions entre particules proviennent du fait que les particules ont des tailles différentes et qu'elles acquièrent ainsi des vitesses différentes.

D'après LEVICH (Le-2), le nombre de collisions s'écrit :

$$J_{ij} = C(a_i+a_j)^2 (a_i^2 - a_j^2) n_i n_j$$

C, appelée constante de turbulence est fonction de la densité des particules, de la viscosité cinématique et de la dissipation d'énergie.

$$\frac{\partial n_h}{\partial t} = C \left[ \int_{a_o}^{a_{h-o}} (a_i+a_{h-i})^2 (a_i^2 - a_{h-i}^2)^2 \left(\frac{a_h}{a_{h-i}}\right)^2 n_i n_{h-i} da_i - 2 \int_{a_o}^{a_\infty} (a_h+a_i)^2 (a_h^2-a_i^2) n_h n_i da_i \right] \quad (22)$$

Puisque $\partial n_h/\partial t$ est proportionnel au carré de la somme des rayons, la présence de grosses particules favorise le taux de coagulation. Il est nécessaire d'avoir un coefficient de turbulence C supérieur à $10^7 cm^{-1} min^{-1}$ pour produire un effet significatif sur le taux de coagulation.

II.4 - Perte sur les parois

On peut définir la perte (impact...) sur les parois par :

$$\frac{\partial n_h}{\partial t} = - \beta n_h$$

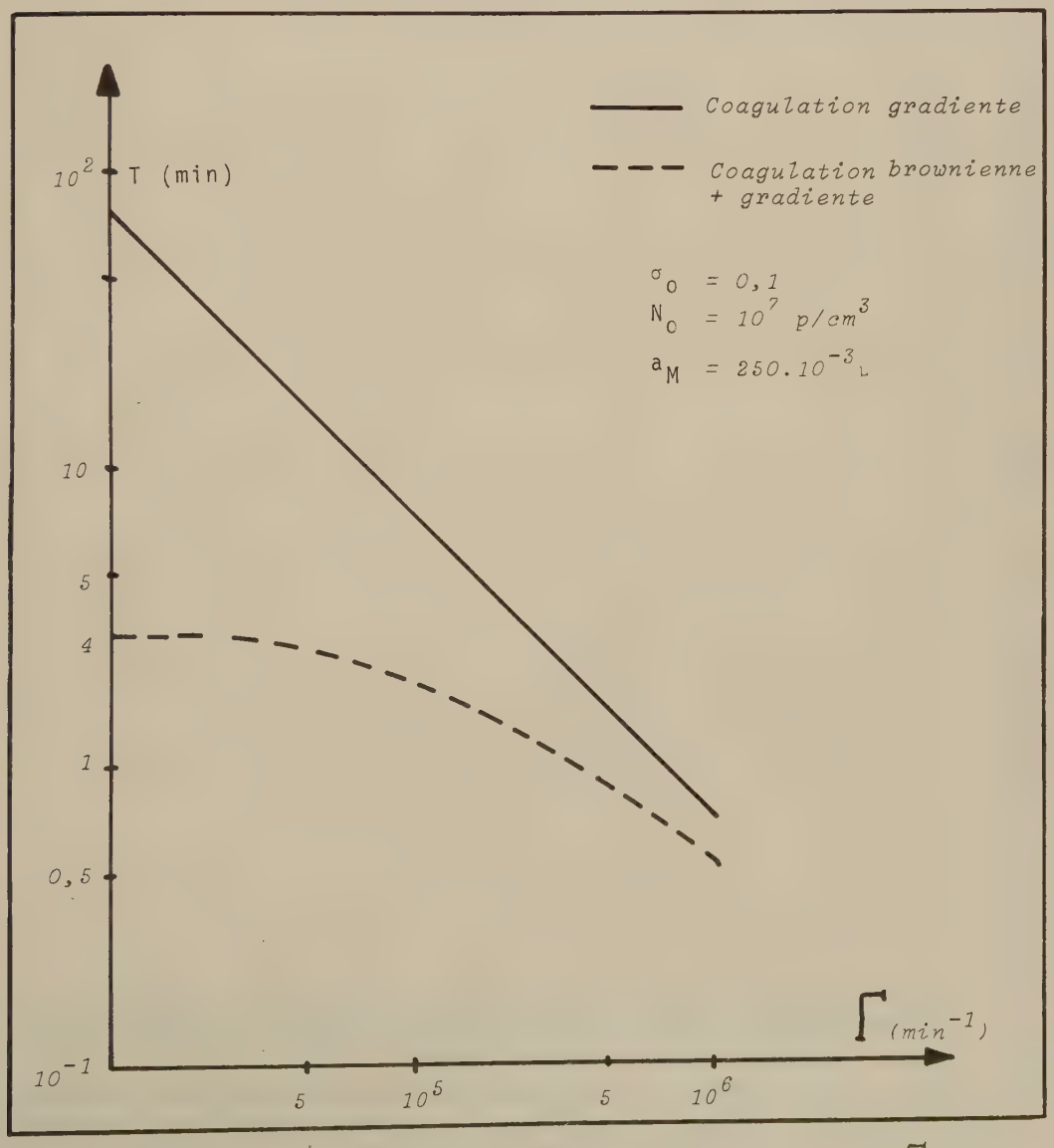



*FIGURE 52 : Courbe de variation de T en fonction de $\Gamma$ pour deux types de coagulation .*

Cette équation suppose que le coefficient de perte est indépendant de la taille des particules. Cela est vrai sauf dans deux cas extrêmes qui se compensent :

- pour les petites particules, $a_m < 5\ 10^{-7}$cm, leur fort coefficient de diffusion favorise leur dépôt sur les parois ;
- pour les grosses particules, $a_m > 10^{-4}$ cm, leur forte inertie favorise leur dépôt lors des changements de direction (obstacles, coude...).

La plupart du temps la perte sur les parois n'est pas considérée seule, mais est associée à la coagulation brownienne. On voit sur la figure 53 que la perte sur les surfaces contrecarre la coagulation brownienne puisqu'elle fait retrécir la distribution lorsque β augmente.

Cette remarque entraîne la nécessité de faire les mesures de coagulation avec beaucoup de soins et de tenir compte éventuellement de β.

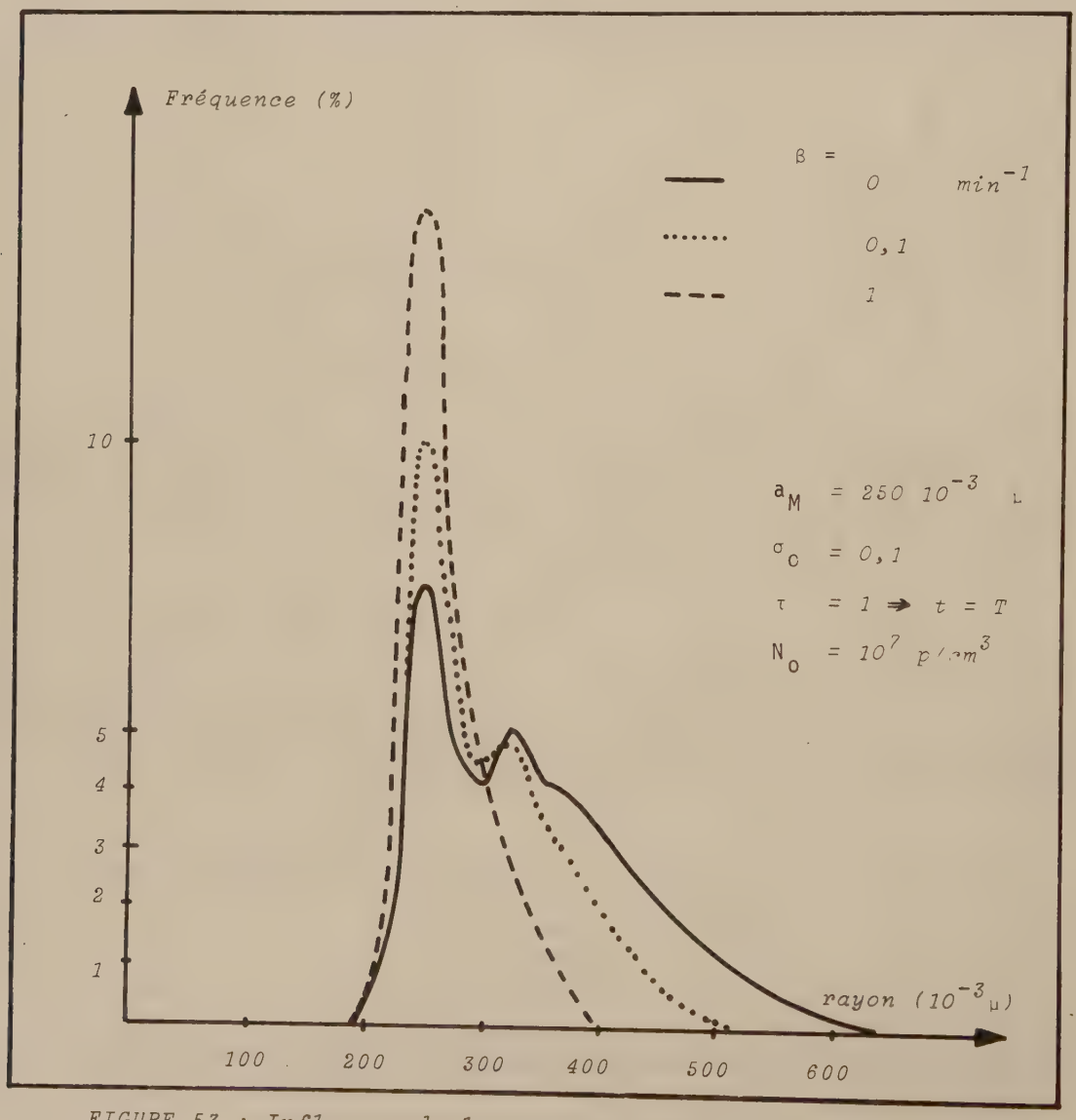



*FIGURE 53 : Influence de la perte sur les parois sur la distribution granulométrique.*

## III. PARTICULES RADIOACTIVES

Les phénomènes décrits dans le paragraphe II ont la même influence sur les particules radioactives que sur les noyaux de condensation. Nous avons vu qu'une particule radioactive est obtenue par fixation d'un aérosol radioactif sur un noyau de condensation. On peut exprimer cette fixation par :

$$\frac{dn^+}{dt} = -n^+ \beta_o^+ N_o - n^+ \sum_{p=1}^{\infty} (\beta_{1p}^+ N_p^+ + \beta_{2p}^- N_p^-) = \beta n^+$$

$\beta$ est appelé coefficient de fixation totale tandis que $\beta_o^+$ $\beta_{1p}^+$ $\beta_{2p}^-$ représentent les coefficients de fixation des petits ions sur les noyaux neutres, les gros ions positifs et négatifs portant 1 ou 2 charges.

Comme BRICARD, on peut écrire (Br-1) :

$$\beta = \frac{4\pi DR}{I(R)}$$

$I(R)$ est une fonction voisine de 1 pour $R > 3 \cdot 10^{-6}$ cm.

De nombreux auteurs ont étudié les variations de $\beta$ et $\beta_o$ en fonction du rayon de l'aérosol ; je donne sur la courbe 54 A les valeurs données par MONHEN (Mo-1).

Appelons maintenant $N_R^-$ ; $N_R^+$ et $N_R^\circ$ les concentrations de ces noyaux radioactifs respectivement positifs , négatifs et neutres.

Les variations dans le temps de $N_R^-$, $N_R^+$ et $N_R^\circ$ sont décrites par BRICARD (Br-3).

$$\frac{dN_R^+}{dt} = \beta_o^+ n^+ N_R^\circ - \beta_+^- n^- N_R^+ + \beta_o^+ n_R N_o \qquad (24)$$

$$\frac{dN_R^-}{dt} = \beta_o^- n^- N_R^\circ - \beta_-^+ n^+ N_R^- \qquad (25)$$

$$\frac{dN_R^\circ}{dt} = \beta_+^- n^- N_R^+ + \beta_-^+ n^+ N_R^- + \beta_-^+ n_R N_R^- - \beta_o^+ n^+ N_R^\circ - \beta_o^- n^- N_R^\circ \qquad (26)$$

$n^+$ $n^-$ sont les concentrations en noyaux positifs et négatifs naturels tels que :

$$\frac{dn^+}{dt} = q - \alpha n^+ n^- - \beta n^+$$

$$\frac{dn^-}{dt} = q - \alpha n^+ n^- - \beta n^-$$

$q$... nombre de paires de petits ions créés par $cm^3$ et par seconde
$\alpha$... coefficient de recombinaison des petits ions
$\beta$... déjà défini
$n_R$.. concentration en ions radioactifs positifs.

Les β indices expriment les différents types de fixation (par exemple $\beta_o^+ n^+ N_R^\circ$ exprime la disparition des noyaux radioactifs neutres par fixation d'un petit ion positif. $\beta_o^+$ est le coefficient de fixation de ce phénomène).

A l'équilibre on peut écrire que :

$$\frac{dN_R^+}{dt} = \frac{dN_R^-}{dt} = \frac{dN_R^\circ}{dt} = 0$$

De (25) on tire :

$$\frac{N_R^\circ}{N_R^+} = \frac{\beta_-^+ n^+}{\beta_o^- n^-}$$

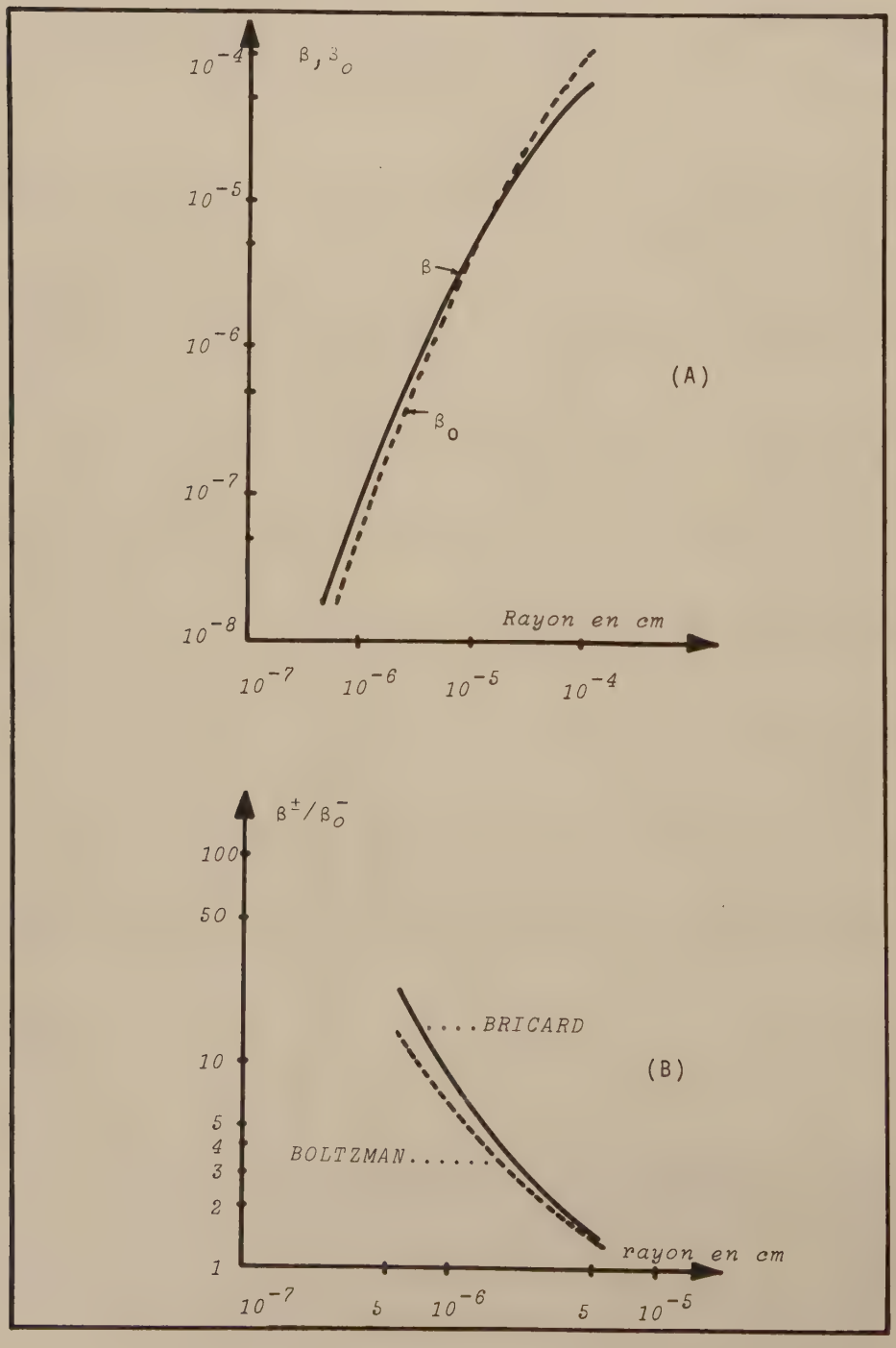



*FIGURE 54 : Variations de β et $\beta_o$ (A) et $\beta^\pm/\beta_o^-$ (B) en fonction du rayon des particules.*

On peut écrire, si on néglige l'action du libre parcours moyen et celle de l'image électrique :

$$\frac{\beta_o^+}{\beta_o^-} = \frac{\beta_{2p}^+}{\beta_{2p}^-} = \frac{\beta_p^+}{\beta_p^-} = \frac{D^+}{D^-}$$

Ces relations sont valables pour $R > 2\ 10^{-6}$cm. PLUVINAGE (Pl-1) KEEFE et alii (Ke-1) et BRICARD (Br-4) ont étudié les variations de $\beta_+^- / \beta_o^-$ en fonction du rayon des particules, cette variation est donnée sur la figure 54 B.

On peut donc écrire :

$$\frac{N_R^-}{N_R^+} = \left(\frac{n^- D^-}{n^+ D^+}\right)^2 - \left(\frac{n^- D^-}{n^+ D^+}\right) \frac{\beta_o n_R N_o}{\beta^+ n^+ N_R^+}$$

et

$$\frac{N_R^\circ}{N_R^-} = \left(\frac{n^- D^-}{n^+ D^+}\right) \frac{\beta_-^+}{\beta_o^+} - \frac{n_R N_o}{n^+ N_R^+}$$

Lorsque le taux d'ionisation est grand c'est-à-dire ($n^+$ et $N_R^+$ grands) on peut écrire :

$$\frac{N_R^+}{N_R^-} = \left(\frac{n^+ D^+}{n^- D^-}\right)^2$$

et

$$\frac{N_R^\circ}{N_R^-} = \left(\frac{n^- D^-}{n^+ D^+}\right) \frac{\beta_-^+}{\beta_o^+}$$

cette dernière valeur peut s'écrire (Th-4, Fu-3) :

$$\frac{N_R^\circ}{N_R^-} = \frac{\beta_+^-}{\beta_o^-}$$

Connaissant le rayon moyen des particules on détermine $\beta_-^+ / \beta_o^-$ par lecture sur la courbe de la figure 54B et on vérifie avec les valeurs expérimentales de $N_R^\circ / N_R^-$.

# CHAPITRE III

## RESULTATS EXPERIMENTAUX

Après avoir décrit les principales situations d'expérimentation je donnerai, séparément pour les noyaux et les particules radioactives, les diverses caractéristiques physiques que j'ai pu mettre en évidence (taille, état de charge, nature...) ; cela sera fait en fonction du temps de vie des particules : au chantier d'abord (conditions à l'origine) puis sur un retour d'air de plus en plus lointain.

### I. SITUATION DES EXPERIENCES

Pour rendre les mesures plus représentatives cinq principaux points d'expérimentation ont été choisis (figure 55).

#### I.1 - Trois points près d'un chantier

- point A : R 744 N 280 Fanay. Les mesures sont faites à 30 mètres environ de ce chantier situé en avancement . Seules des déterminations de sourcesde noyaux y ont été faites.

- point B : D 460, entre N 160 et N 120 Fanay. Ce chantier est situé en dépilage. Le point de prélèvement est situé au N 160 à environ 80 mètres de celui-ci. Des mesures de sources de noyaux, de concentration en aérosols chargés, de granulométrie des aérosols chargés ont pu y être faites.

- point C : D 778, entre N 280 et N 240 Fanay. Ce chantier est situé en dépilage et fonctionne sous le système de petites chambres d'extractions remblayées hydrauliquement. Le point de mesure situé au N 200 se trouve à environ 60 m du chantier. Des mesures du rayon moyen des noyaux y ont été faites.

#### I.2 - Un point sur le retour d'air proche de deux chantiers

- point D : R 433, N 160 Margnac. Avant de passer devant la recoupe R 443 en direction de Peny, l'air balaye deux chantiers, en activité au moment des mesures situés à 300 m et 500 m. Une installation électrique provisoire nous a permis de faire de nombreuses mesures : granulométrie d'aérosols radioactifs chargés (Lo-1) et de noyaux (Ma-1).

#### I.3 - Un point sur un retour d'air lointain

- point E : Il s'agit du "Labo 120" de Fanay dont nous avons décrit la ventilation dans le paragraphe I, chapitre II. En principe l'air traversant le "labo 120" a

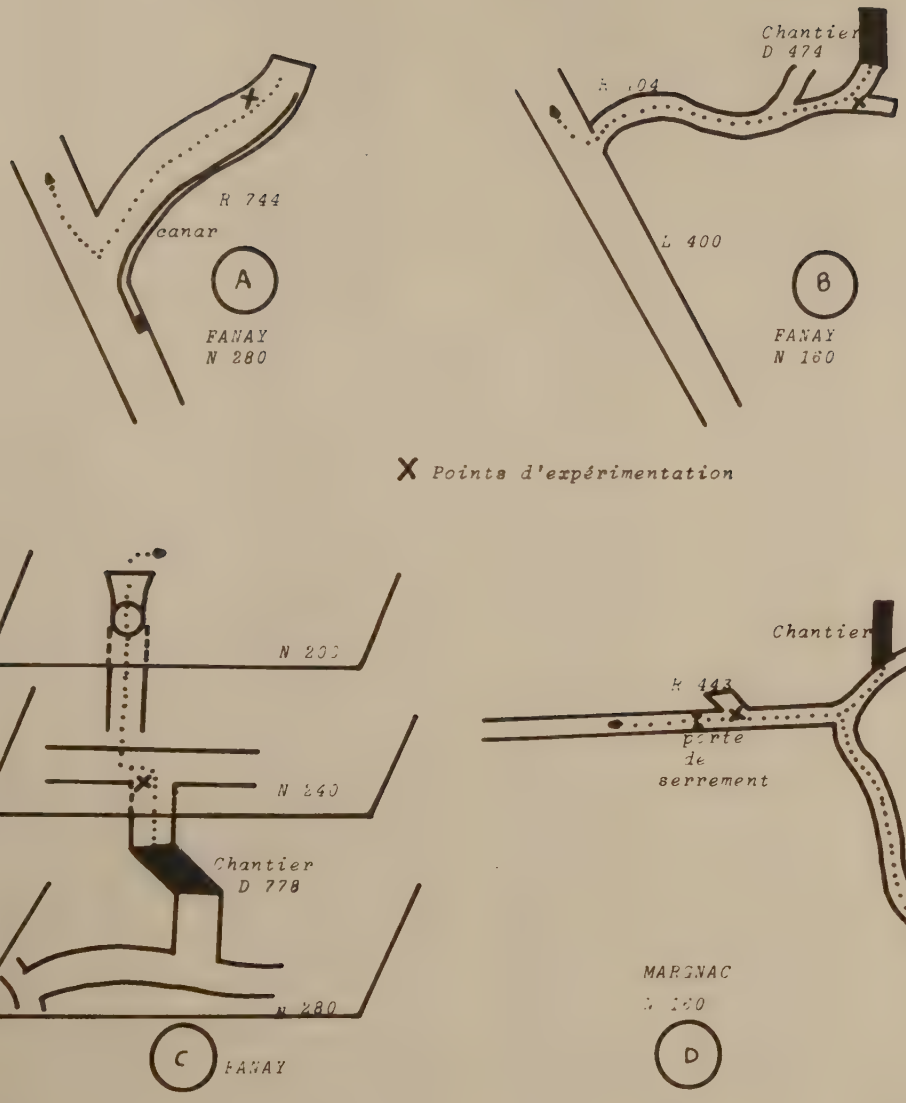



FIGURE 55: Localisation des lieux d'expérience

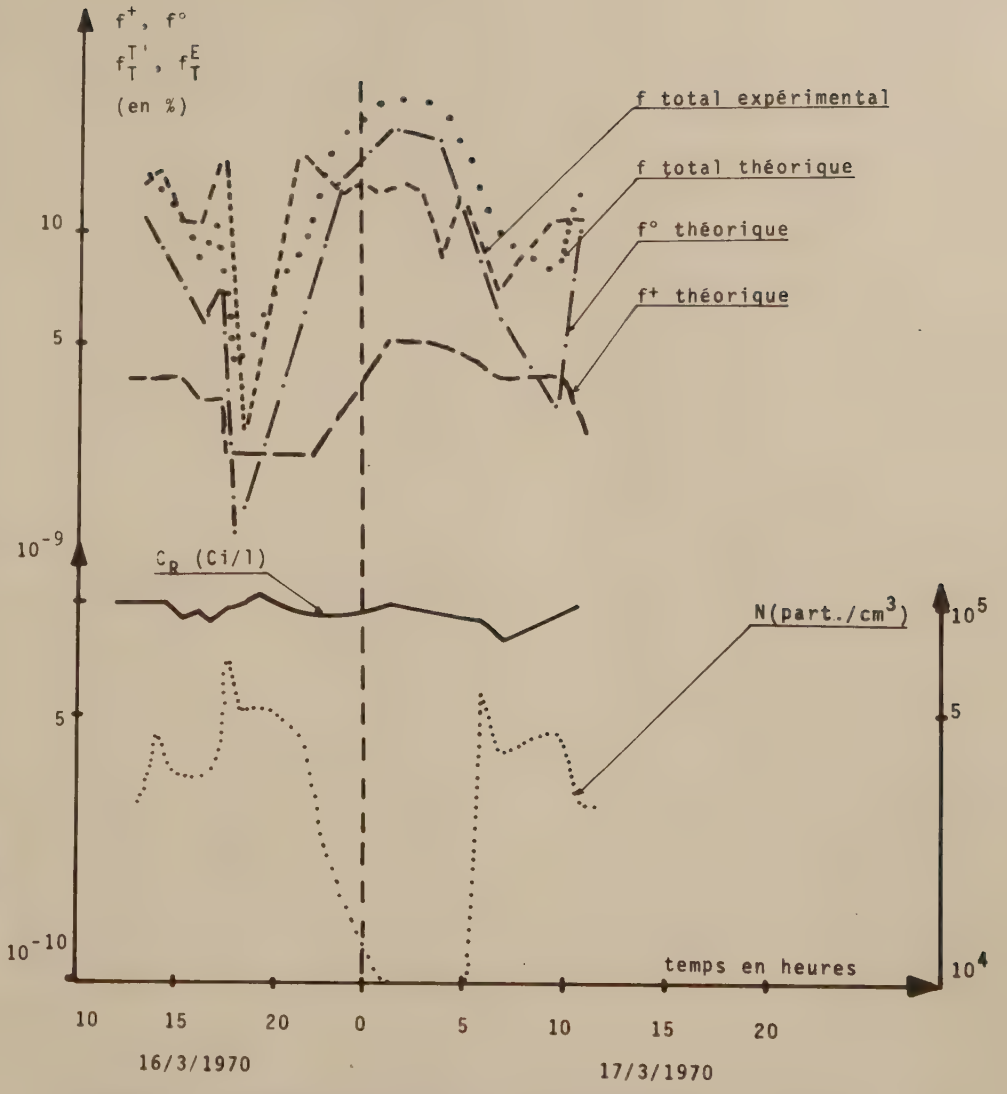


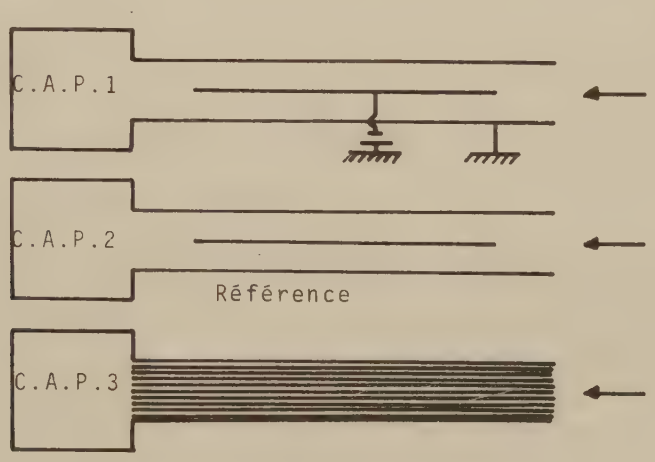

FIGURE 56 : Comparaison des mesures expérimentales et des résultats théoriques des concentrations en particules ultra-fines.

une origine radioactive assez lointaine (25 à 30 min) ; mais des changements d'aérage peuvent se produire. Mesures faites : granulométrie des aérosols radioactifs et noyaux de condensation, chargés et neutres, nature des aérosols.

## II. PARTICULES ULTRAFINES

### II.1 - Mise en évidence

La mesure expérimentale de $f^+$ et $f^\circ$ a été faite au labo 120 (point E) suivant le montage :




Le débit traversant les 3 ensembles a été fixé à 55 ± 5 $cm^3/s$. Le pouvoir d'arrêt du tube à ion et de la batterie de diffusion est de 100 % pour les particules de rayon inférieur à $10^{-7}$ cm. Le tube à ions sans tension sert de référence. La fraction d'activité existant sous forme ultrafine est déduite par simple différence entre l'activité de référence et :

- l'activité du CAP 3 pour la fraction ionisée
- l'activité du CAP 5 pour la totalité.

A partir des résultats obtenus en I.2 , on peut calculer les valeurs théoriques prises par $f^+$, $f^\circ$ et $f = f^+ + f^\circ$.

Un exemple de ce calcul est donné sur la figure 56 où sont représentées:

- les variations expérimentales de $C_R$, de N et de f ;
- les variations théoriques de $f^+$, $f^\circ$ et f.

Compte tenu de la précision de nos mesures nous obtenons un assez bon accord entre la théorie et l'expérience.

Le tableau 12 résume les résultats caractéristiques obtenus dans la mesure de f.

### II.2 - Temps de vie

Les valeurs de $\beta_o$ correspondant aux conditions expérimentales de la mine sont comprises entre $5.10^{-7}$ ($r_m = 3.10^{-6}$ cm) et $2.10^{-6}$ ($r_m = 6\ 10^{-6}$cm). Les concentrations

| Jour (Novembre) | Heures | $N.10^3$ p./cm$^3$ | N' p./cm$^3$ | $C_R$ $10^{-10}$Ci/l | $f^+$ expérimental (%) | $f^+$ théorique | Remarques |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Vendredi 7 | 24 | 20 | 100 | 16 | 5 | 4 | 3 postes |
| Samedi 8 | 14 | 18 | 90 | 18 | 3 | 4,5 | 3 postes |
| Samedi 8 | 24 | 5 | 100 | 14 | 6 | 4 | Arrêt activité |
| Dimanche 9 | 11 | 3 | 0 | 1 | 16 | 14 | Arrêt activité |
| Mercredi 12 | 16 | 25 | | 20 | 6 | 3,5 | 3 postes |
| Jeudi 13 | 14 | 8 | | 12 | 11 | 4,5 | 3 postes |
| Vendredi 14 | 20 | 40 | | 12 | 5 | 3 | 3 postes |
| Samedi 22 | 14 | 33 | 100 | 11 | 8 | 3,5 | 2 postes |
| Dimanche 23 | 15 | 3 | 0 | | 20 | | Arrêt activité |
| Lundi 24 | 6 | 35 | 50 | | 8 | | 2 postes |
| Lundi 24 | 22 | 10 | 30 | | 10 | | Arrêt activité |

*N... concentration en noyaux d'Aitken (en particules par centimètre cube)*

*N'.. concentration en aérosols de taille supérieure à 0,5 µ(en particules par centimètre cube)*

*$C_R$.. concentration en radon (curie par litre )*

*$f^+$.. activité existant sous forme ultra-fine ionisée (en %)*

TABLEAU 12

en noyaux de condensation entre $2.10^4$ et $1,6.10^6$ particules /cm$^3$. J'ai représenté dans le tableau ci-dessous les temps de vie prévisibles pour les particules ultrafines dans les mines d'uranium en se servant de la formule donnée au chapitre II, paragraphe I.3.

| Localisation | N particules/cm$^3$ | | $\beta_o$ cm$^3$/s | | $\tau$ s. | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | Min. | Max. | Min. | Max. | Min. | Max. |
| Chantier | $2\ 10^4$ | $1,6\ 10^6$ | $5\ 10^{-7}$ | $2\ 10^{-6}$ | 0,3 | 100 |
| Labo "N 120" | $2\ 10^4$ | $2\ 10^5$ | $5\ 10^{-7}$ | $2\ 10^{-6}$ | 2,5 | 100 |

TABLEAU 13

II.3 - Discussion

Tout d'abord on doit noter que les valeurs observées pour f sont inférieures ou égales à 20 %. Les résultats sont différents de ceux obtenus dans d'autres mines d'uranium à l'étranger. CRAFT, OSER et NORRIS (Cr-1) aux Etats-Unis ont trouvé un pourcentage de particules ultrafines compris entre 0 et 73 % suivant les conditions. FUSAMURA (Fu-1) par contre, a trouvé entre 7 et 35 % de l'activité fixée sur ces particules ; SERDJUKOVA et SAVENKO (Se-1) en URSS ont obtenus des valeurs comparables et qui sont du même ordre de grandeur que celles que nous avons notées.

Cependant les conditions expérimentales de ces différents auteurs ne sont pas connues (humidité et surtout concentration en noyaux de condensation...) ce qui fait que

les résultats sont difficilement comparables.

Dans notre cas, la connaissance exacte des conditions de l'expérience (concentration en radon, en noyaux de condensation, humidité, pression...) doit permettre d'évaluer, sans avoir à la mesurer, la valeur de f (ce qui sera d'un grand intérêt pour la radioprotection).

De toute façon les valeurs prévisibles du temps de vie des particules ultrafines près d'un chantier en activité sont de l'ordre de la seconde et donc ces particules sont très difficilement détectables.

## III. NOYAUX DE CONDENSATION

### III.1 - Concentration en noyaux de condensation

#### *III.1.A - Sources*

Des mesures de la concentration en noyaux de condensation effectuées près des chantiers peuvent permettre d'évaluer la contribution de chaque activité minière, à la génération de noyaux. D'autre part des mesures de prospection systématique ont été faites en tout point des mines d'uranium pour cerner les autres sources potentielles de noyaux. Les résultats sont donnés dans le tableau 14, où sont données les valeurs maximales et minimales des différentes activités diminuées de la valeur moyenne normale (pause, changement d'équipe).

| Opérations | Concentration (en $10^4$ noyaux/$cm^3$) | | | Conditions |
|---|---|---|---|---|
| | minimale | maximale | moyenne | |
| Pause, changement d'équipe | 2,5 | 4 | 3,2 | |
| Bruit de fond global | 0,3 | 0,8 | 0,5 | Mesuré la nuit en l'absence d'activité |
| Tir | 32 | 150 | en fonction de la puissance | |
| Chargement | 40 | 50 | 45 | |
| Loco | 30 | 60 | 50 | |
| Scrappage | 15 | 18 | 16,5 | |
| Déblayage | 35 | 45 | 40 | |
| Foration | 15 | 20 | 18 | |
| Boisage | 8 | 10 | 9 | |
| Chute d'eau | 0,5 | | 0,5 | |
| Cul de sac non ventilé | 3 | 5 | 4 | |

TABLEAU 14 : Sources de noyaux de condensation

On peut analyser les valeurs moyennes obtenues :

- en l'absence d'activité minière, la concentration est de l'ordre de 2 à $3.10^4$ p/cm$^3$ et est indépendante du lieu de la mesure ;
- en période d'aménagement du chantier (pose de rail, boisage...) les concentrations sont inférieures à $10^5$ p/cm$^3$ mais elles sont très variables ;
- pendant le scrappage ou le raclage les concentrations sont comprises entre $10^5$p/cm$^3$ et $5.10^5$p/cm$^3$ ;
- durant la foration les concentrations sont différentes selon l'utilisation d'un ou de plusieurs marteaux perforateurs et selon les caractéristiques des marteaux eux-mêmes ;
- lors de passage de locotracteurs, les concentrations sont extrêmement variables. Elles sont généralement très élevées (entre 3 et $6.10^5$ p/cm$^3$ et parfois jusqu'à $10^6$ p/cm$^3$) malgré le système barboteur dont ils sont munis ; elles sont aussi variables selon les caractéristiques des locotracteurs (puissance, ralenti, accélération...) ;
- la puissance de l'explosif joue un grand rôle dans les concentrations observées lors d'un tir ainsi que la distance entre le point de prélèvement et le tir. Ainsi une mesure à 10 mètres d'un tir de 200 g d'explosifs a donné une concentration maximale de $1,5.10^6$ p/cm$^3$ ; tandis qu'un prélèvement dans des fumées d'un tir de 32 kg d'explosif, à 60 m du lieu de l'explosion n'a donné que $10^6$p/cm$^3$.

### *III.I.B - Variations de la concentration en noyaux*

#### *B.a - Avec le temps*

La mesure de N à été effectuée de façon systématique et continue au "Labo step" pendant une dizaine de périodes d'une semaine. Malgré l'éloignement du point de mesure des chantiers en activité, on note des variations nettes dans les concentrations observées (entre $3.10^4$ et $10^5$ particules par cm$^3$). Cependant on note des valeurs reproductibles dans le temps. Ainsi le tir de fin de poste (pour des questions de sécurité), la pause, le "changement d'équipe", ponctuent les variations observées (figure 57). L'activité de la mine peut être suivie de façon régulière par la mesure de la concentration en noyaux.

#### *B.b - Avec la distance*

Cela suppose une source génératrice de noyaux en caractéristiques et concentration constantes, sans perturbations extérieures. C'est très difficile à obtenir dans une mine en activité pendant le temps des mesures (30à 40 min). J'ai néanmoins pu utiliser un locotracteur fonctionnant au ralenti (pendant une période de pause). J'ai mesuré à la fois, concentration et rayon moyen des aérosols émis le long d'une galerie de 500 m. (cf. Figure 65 et chapitre II, § III.C).

Si nous ne tenons compte que de la coagulation, la diminution de concentration en fonction du temps (ou de la distance) s'écrit (en supposant un aérosol homogène) :

$$dN/dt = -KN^2$$

K... coefficient de coagulation de particules de rayon moyen $r_m$ ;
N... concentration en particules de rayon moyen $r_m$.

Si pour t = o, N = $N_o$ on obtient :

$$N = \frac{N_o}{1+N_o Kt}$$

Si nous considérons un aérosol monodispersé de rayon r=4.$10^{-6}$cm (K # $10^{-9}$ $cm^3/s$) on a N # $N_o$ au bout de 10 minutes (courbe —□— de la figure 58). Admettons maintenant que notre aérosol soit très polydispersé et composé de deux classes de particules l'une de $r_1$ = $10^{-6}$cm et l'autre de $r_2$ = 6,$10^{-6}$cm. Dans ce cas K # 5.$10^{-9}$ $cm^3/s$ et la décroissance de la concentration en fonction du temps sous l'action de la coagulation est donnée sur la courbe (△--△) de la figure 58.(La même valeur de K est obtenue pour $r_1$ = 2,$10^{-6}$cm et $r_2$ = 2.$10^{-5}$cm).

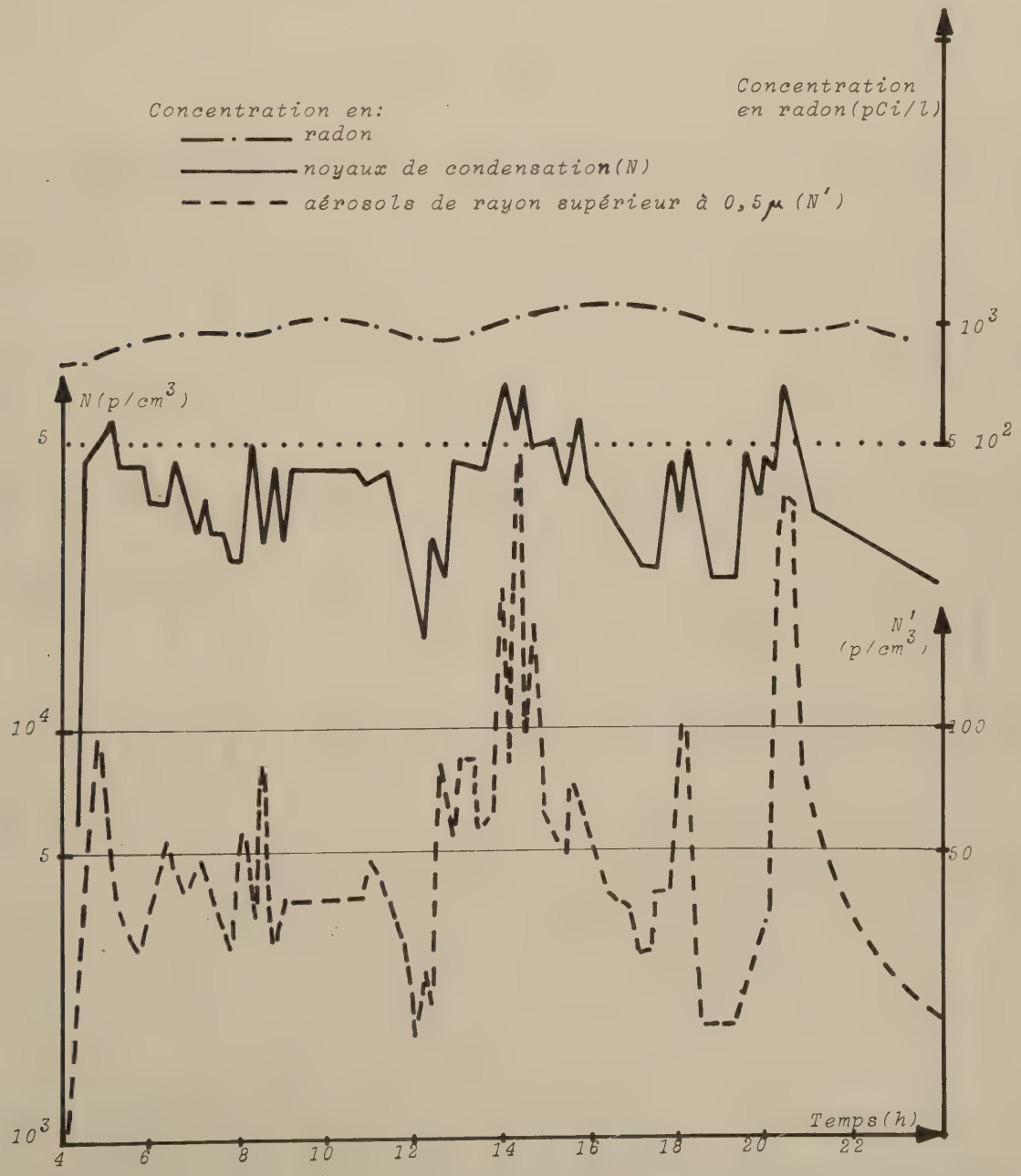



FIGURE 57: Courbes de variation en fonction du temps des concentrations en radon, en noyaux, en aérosols.

On voit que ces courbes théoriques ont une décroissance très lente. Pour expliquer la diminution expérimentale beaucoup plus accentuée que nous observons, j'ai introduit un terme $\beta$ de perte sur les parois (par impact, diffusion turbulente...) déjà défini au chapitre II, paragraphe II.2.C.

En première approximation $\beta$ est indépendant du rayon des particules (cf. Chapitre II, § II.3.D) et ne dépend que de la galerie, du régime de l'air,....

La variation en fonction du temps de la concentration s'écrit :

$$\frac{dN}{dt} = -KN^2 - \beta N$$

Si pour $t = o$, $N = N_o$, on a :

$$N = \frac{N_o e^{-\beta t}}{1+N_o \frac{K}{\beta}(1-e^{-\beta t})}$$

J'ai tracé les courbes théoriques de variation en fonction du temps, de N pour différents K (entre $10^{-10}$ et $10^{-5}$ $cm^3/s$) et différents $\beta$ (entre $10^{-10}$ et $10^{-1}$ $s^{-1}$).

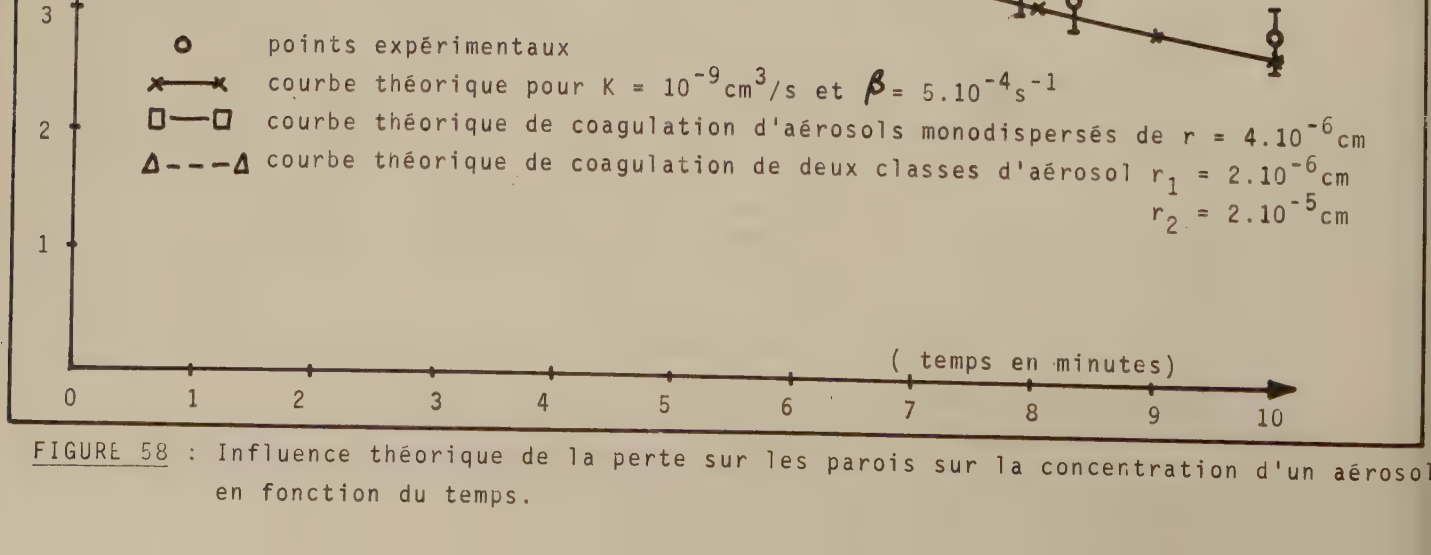



FIGURE 58 : Influence théorique de la perte sur les parois sur la concentration d'un aérosol en fonction du temps.

Pour l'expérience réalisée, on voit (figure 58) que la décroissance théorique caractérisée par $K = 10^{-9} cm^3/s$ et $\beta = 5.10^{-4} s^{-1}$ coïncide bien avec les résultats expérimentaux.

La détermination de $\beta$ nécessite la connaissance, d'une part du rayon moyen des aérosols et d'autre part de la décroissance de la concentration en noyaux en fonction du temps. Une mesure pratique dans les mines d'uranium pour diminuer les concentrations en noyaux sera d'augmenter $\beta$ (en augmentant la turbulence par exemple).

III.2 - Etat de charge

*III.2.A - Près d'un chantier*

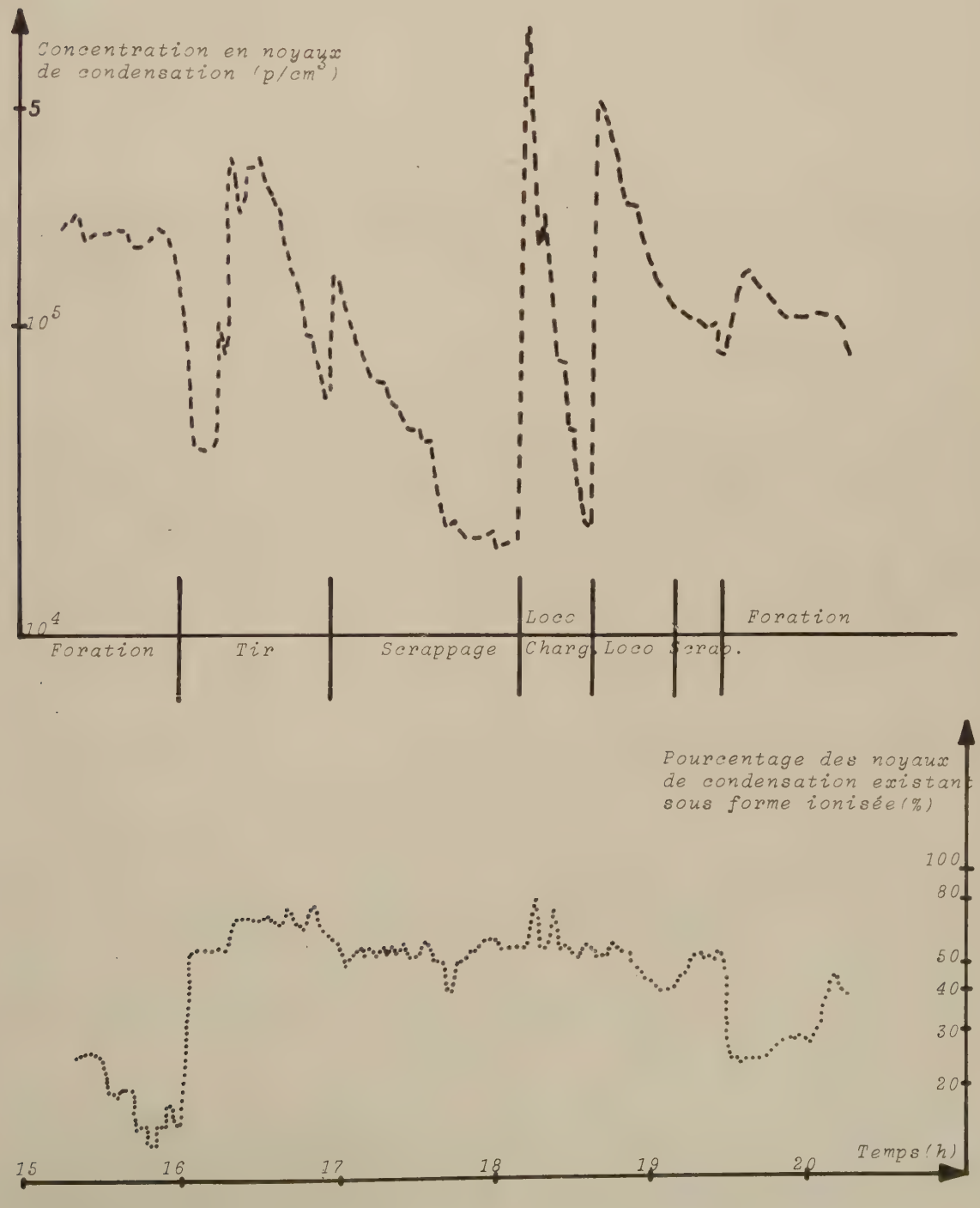



*FIGURE 59: Courbe de variation de $N^{\pm}/N$ en fonction du temps*

Une mesure en fonction du temps de $N_-^+/N$ (pourcentage de noyaux chargés) a été faite au point d'expérimentation B (cf. figure 55). De grandes variations ont été enregistrées selon l'activité des mineurs ; les valeurs extrêmes notées sont 0,15 et 0,80 (figure 59). Les valeurs les plus fortes sont observées dans des fumées d'après tir ou de locotracteur. Les faibles valeurs sont relevées pendant des forations.

En période d'inactivité (pause, changement d'équipe) on note un retour à une valeur moyenne de $N_-^+/N = 0,55 \pm 0,08$.

*III.2.B - Sur un retour d'air*

La majeure partie des valeurs expérimentales ont été obtenues au Labo STEP (Point E de la figure 55) à la fois avec des tubes de Zeleny et le précipitateur électrostatique plan (cf chapitre appareillage). La valeur :

$$\frac{N_-^+}{N} = 0,53 \pm 0,07$$

représente assez bien l'ensemble des résultats obtenus durant plusieurs campagnes de mesures et est à rapprocher de celle obtenue à proximité d'un chantier en période d'inactivité.

*III.2.C - Discussion*

A proximité des chantiers la concentration en particules chargées varie de façon importante suivant les différentes activités minières. Cela est principalement du à l'activité minière elle-même. Par exemple lors de la foration une humidification intense est opérée (pour réduire le dégagement en poussières) et cela doit éliminer une grande partie des ions. Les valeurs identiques notées en période d'inactivité au chantier et sur un retour d'air montrent qu'il tend à se créer un équilibre reproductible dans la répartition des ions et des neutres.

III.3 - Taille

*III.3.A - Totalité des noyaux*

*A.a - Méthode de la batterie de diffusion près d'un chantier*

La mesure a été faite au point d'expérimentation C. Le temps mis par une masse d'air pour parvenir du chantier au point C est d'environ 60 secondes (mesuré lors d'un tir). Deux compteurs de noyaux sont utilisés en parallèle ; l'un mesure n, l'autre $n_o$. ($n_o$ en amont, n en aval de la batterie de diffusion de 200 plaques). Un enregistreur multivoies enregistre les réponses simultanées des deux compteurs. Les résultats les plus caractéristiques sont donnés sur la figure 60.

On note de grandes variations du rayon moyen ($r_m$) en fonction de l'évolution du travail. Les valeurs maximales et minimales sont quelques $10^{-5}$ cm et $1,5.10^{-6}$cm. Dans la plupart des cas toute augmentation de concentration en noyaux résultant d'une activité minière (foration-locotracteur-tir...) est caractérisée au début par une faible

valeur du rayon moyen ($1{,}5\,10^{-6}$cm < $r_m$ < $3{,}5\,10^{-6}$cm) suivie rapidement (quelques minutes) d'une valeur de $r_m$ supérieure à $10^{-5}$cm (figure 60 B). En période de faible variation de la concentration, la valeur se stabilise entre 3 et 5 $10^{-6}$cm (figure 60 A). On remarque ainsi que la plupart des noyaux ont une origine mécanique et que chaque activité minière représente un cas particulier de génération et vraisemblablement de caractéristiques physiques des noyaux émis.

Ces résultats obtenus près d'un chantier sont à rapprocher de ceux obtenus par MADELAINE au point D. A l'aide du compteur de la "Général Electric" et de la batterie de diffusion de 200 plaques, il a fait une série de mesures à 6 l/min :

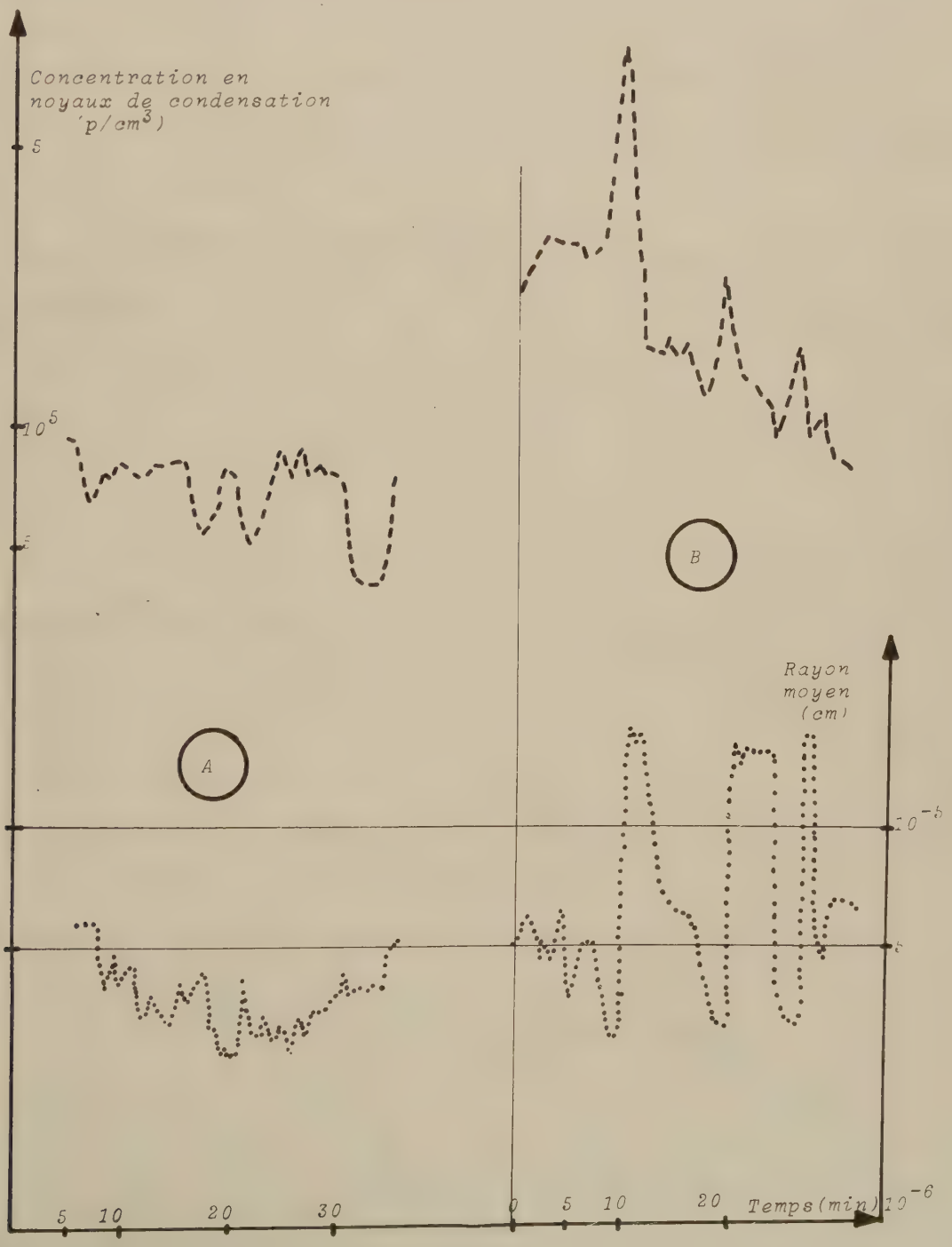



FIGURE 60 : Courbes de variation de la taille des noyaux de condensation en fonction du temps.

$r_a$ = 4,2 $10^{-6}$cm..... pollution normale

$r_a$ = 5,5 $10^{-6}$cm..... locotracteur

$r_a$ = 6,2 $10^{-6}$cm..... tir de mine

*A.b - Méthode de la batterie de diffusion sur un retour d'air*

C'est le cas des mesures effectuées au Labo STEP (Point E). Pendant une longue période (de janvier à juin 1970) les variations des concentrations en noyaux furent lentes et atténuées (conséquence d'une origine lointaine). Cela nous a permis de faire de nombreuses mesures de $n/n_o$ en fonction du débit. Par contre un changement de circuit d'aérage vers juin 1970 a accéléré la circulation de l'air dans la G8 bis. Deux

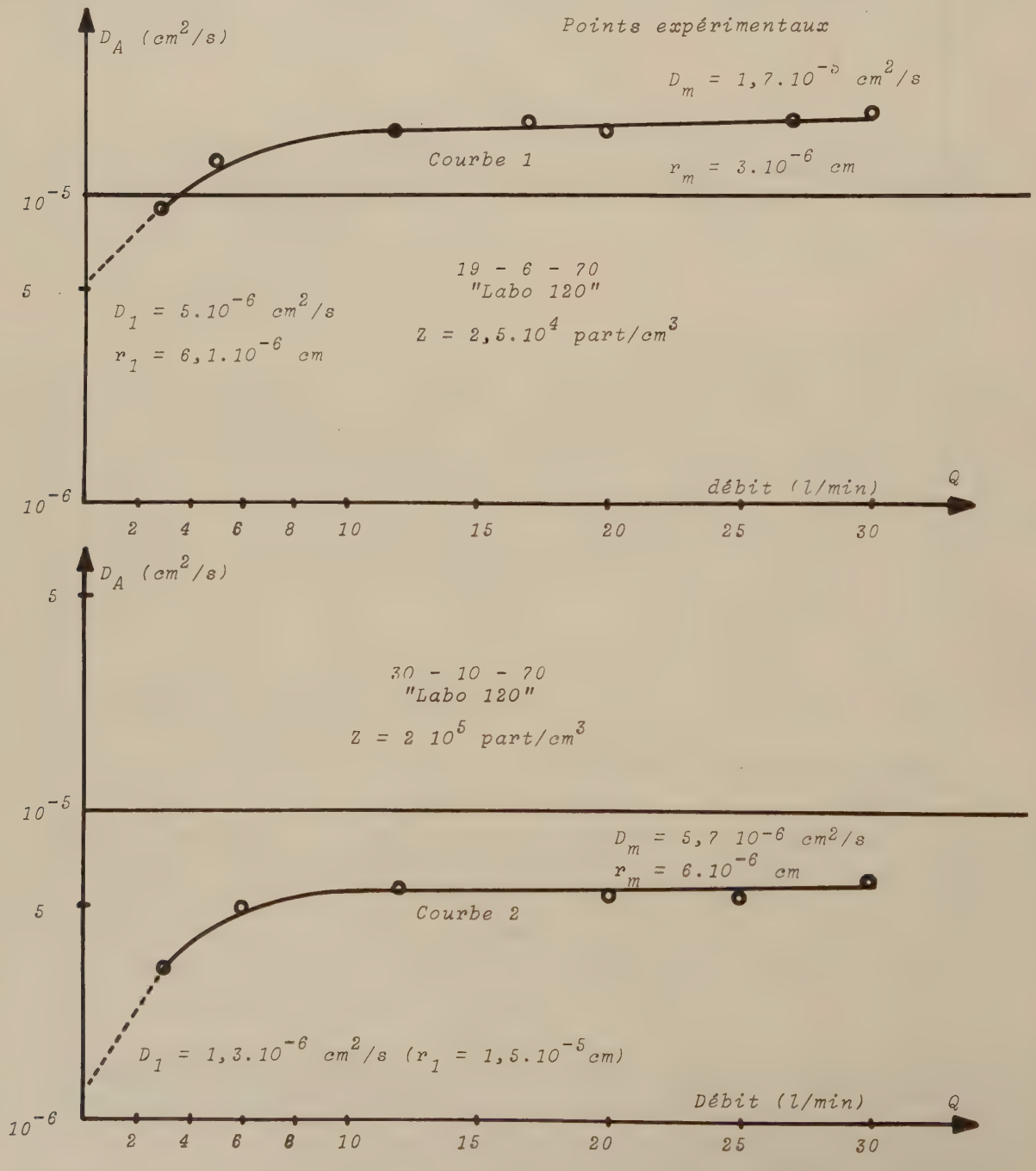



*FIGURE 61 : Courbes de variation de $D_A$ en fonction du débit traversant la batterie de diffusion.*

exemples des variations de $D_A$ (coefficient de diffusion apparent) en fonction du débit Q sont donnés sur la figure 61 et caractérisent assez bien l'ensemble des 50 mesures faites. Dans le premier cas (courbe 2), la concentration moyenne en particules pendant l'expérience est forte : (un tir a eu lieu au N 160) environ $10^5 p/cm^3$. Pour les fortes valeurs du débit la valeur de $D_A$ est considérée comme étant la valeur du coefficient de diffusion moyen $D_m$ ; dans ce cas $D_m = 5,7.10^{-6} cm^2/s$ ($r_m = 6.10^{-6} cm$). Lorsque $Q \to o$ on obtient $D_1$ (plus petit coefficient de diffusion du mélange)$= 1,3.10^{-6} cm^2/s$ ($r_1 = 1,5.10^{-5} cm$).

Par contre dans le deuxième cas (courbe 1) la valeur de Z est normale ($2,5.10^4 p/cm^3$) et dans ce cas $D_m = 1,7.10^{-5} cm^2/s$ ($r_m = 3.10^{-6} cm$) et $D_1 = 5.10^{-6} cm^2/s$ ($r_1 = 6,1.10^{-6} cm$).

J'ai représenté les 50 valeurs de $D_m$ et de $r_m$ obtenues au point E sur la figure 62 en fonction de leur fréquence d'apparition dans les différents intervalles. Les valeurs extrêmes observées sont $5.10^{-6} cm^2/s$ et $2.10^{-5}\ cm^2/s$ correspondant à un rayon de $6.10^{-6} cm$ et $2,8.10^{-6} cm$.

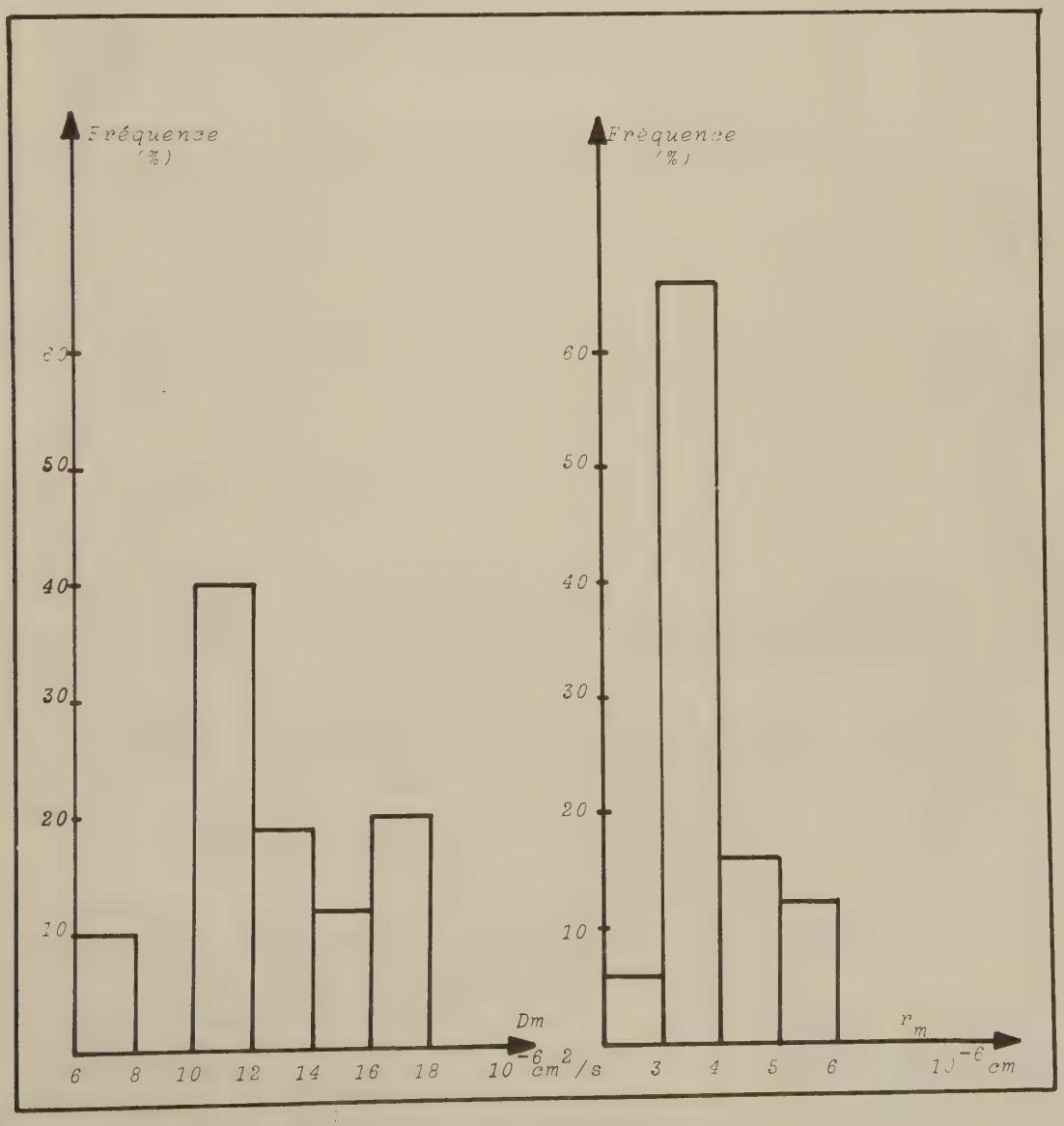



*FIGURE 62: Histogrammes de répartition des valeurs de $D_m$ et $r_m$*

La valeur moyenne du coefficient de diffusion moyen se situe vers $1,3.10^{-5} \pm 0,2$ $cm^2/s$ ($r_m = 3,6 \pm 0,6.10^{-6}$cm. Le dépouillement de la plupart des courbes expérimentales par la méthode des proportions invariables conduit au mélange suivant : 60 % de particules de rayon $2,2.10^{-6}$cm ; 40 % de particules de rayon $6.10^{-6}$cm.

*A.c - Méthode de la mesure de $N_o/Z$ au chantier*

De toute évidence les grandes variations de $N_o/Z$ (cf résultats, § III.2) veulent dire que l'équilibre de Boltzman n'y est pas établi. On peut seulement remarquer qu'en période d'inactivité on a $N_o/Z = 0,55 \pm 0,08$ cela correspond à un rayon de $3,9.10^{-6}$cm (si on admet que l'équilibre des charges est établi pendant cette période).

*A.d - Méthode de la mesure de $N_o/Z$ sur un retour d'air*

La valeur moyenne de $N\pm/Z$ est $0,53 \pm 0,08$ (§.III.2.b) ce qui entraîne pour $N_o/Z$ la valeur de 0,47 ; à cela correspond un rayon équivalent $r_{eq} = 3,9.10^{-6}$cm, qui confirme les valeurs obtenues avec les batteries de diffusion.

*A.e - Méthode de FUCHS*

Les valeurs obtenues par cette méthode sont systématiquement plus fortes que celles données par la méthode directe $n/n_o = f(Q)$. Les deux courbes de la figure 61 donnent respectivement : $r_g = 5.10^{-6}$cm ; Log $\beta_g = 0,2$ et $r_g = 9.10^{-6}$cm ; Log $\beta_g = 0,4$ (traduisant une grande dispersion).

Les différences observées peuvent provenir des méthodes. La valeur de $r_m$ correspond à la moyenne pondérée des constituants tandis que $r_g$ correspond au rayon moyen géométrique (qui ne correspond pas exactement à $r_m$).

*A.f - Etude des décroissances des concentrations en noyaux*

Tout d'abord à l'aide d'un spectromètre ROYCO type PC 210 nous avons mesuré la concentration en particules de rayon supérieur à 0,5µ . Dans tous les cas la contribution de ces particules à la totalité est inférieure à 1 %. On peut donc admettre que l'aérosol minier est composé en presque totalité de particules de rayon inférieur à 0,5 µ . Pour des particules de cette taille le phénomène de sédimentation ne joue que de façon négligeable. Certaines nuits, en l'absence d'activité et de ventilation, la concentration en noyaux de condensation décroit de façon régulière. Cette disparition des noyaux ne peut s'expliquer que par la coagulation, et l'évolution du milieu peut être décrite par :

$$\frac{n_o - n}{n_o} = \gamma t$$

$n_o$... concentration maximale
$n$.... concentration au temps t
$\gamma$.... coefficient de coagulation ($cm^3/s$)

En traçant les valeurs de 1/n en fonction du temps, nous obtenons (figure 63) des droites dont les pentes sont comprises entre 2 et $4.10^{-9}cm^3/s$. Si nous admettons n'avoir en présence que deux groupes de particules ayant un rayon global moyen de $3,5.10^{-6}$cm les valeurs obtenues peuvent correspondre à la coagulation de particules de rayon $10^{-6}$cm et $5.10^{-6}$cm.

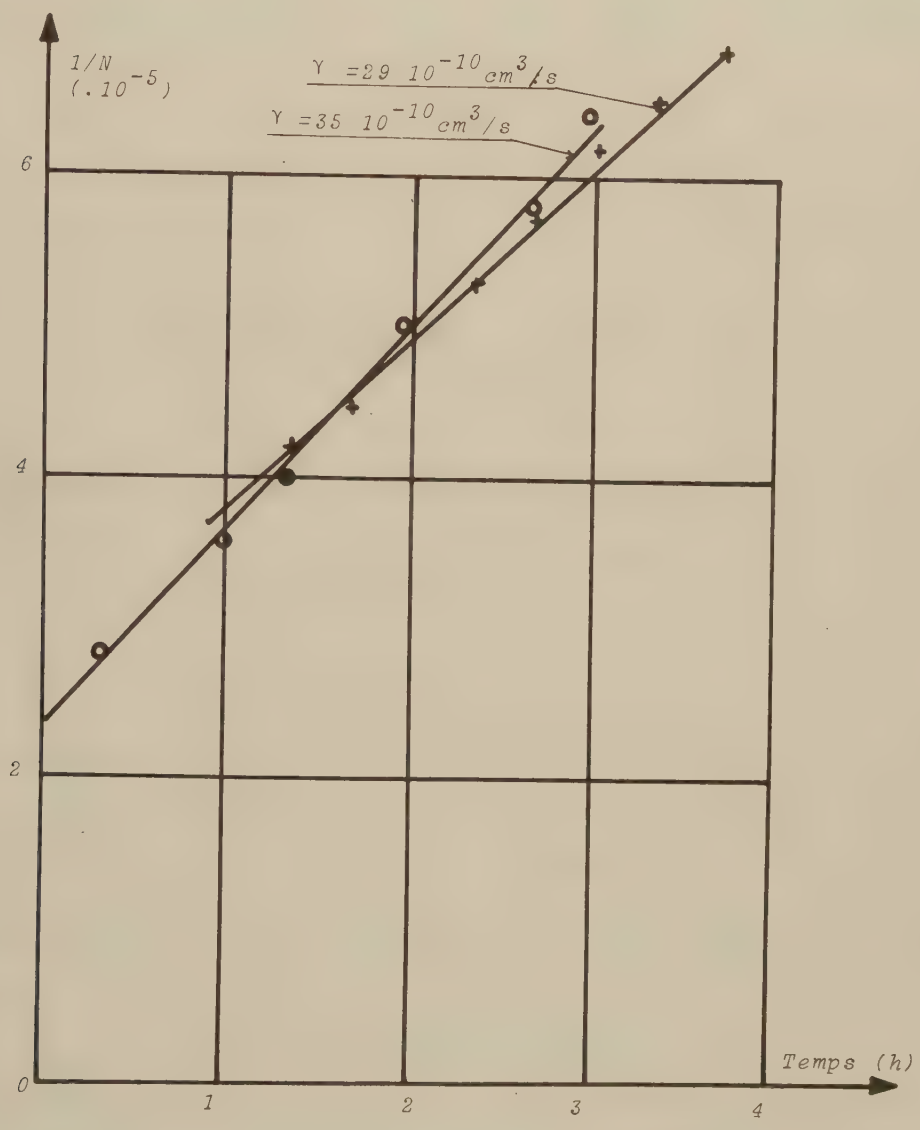



*FIGURE 63: Courbes de variations de 1/N en fonction du temps*

*III.3.B - Noyaux de condensation chargés*

De nombreuses mesures de granulométrie des noyaux de condensation chargés ont été menées à l'aide du précipitateur électrostatique fil-cylindre, tant au laboratoire que près d'un chantier et dans différentes conditions de concentration. Le dépouillement inspiré de la méthode de SOILLEUX a été effectué à l'aide de l'ordinateur. Deux exemples caractéristiques de l'ensemble des expériences sont donnés sur la figure 64. Les mesures n'ont pu être faites au chantier que pendant les périodes de stabilité. Pendant les périodes d'activité du chantier la concentration en noyaux varie très rapidement et interdit toute expérience valable.

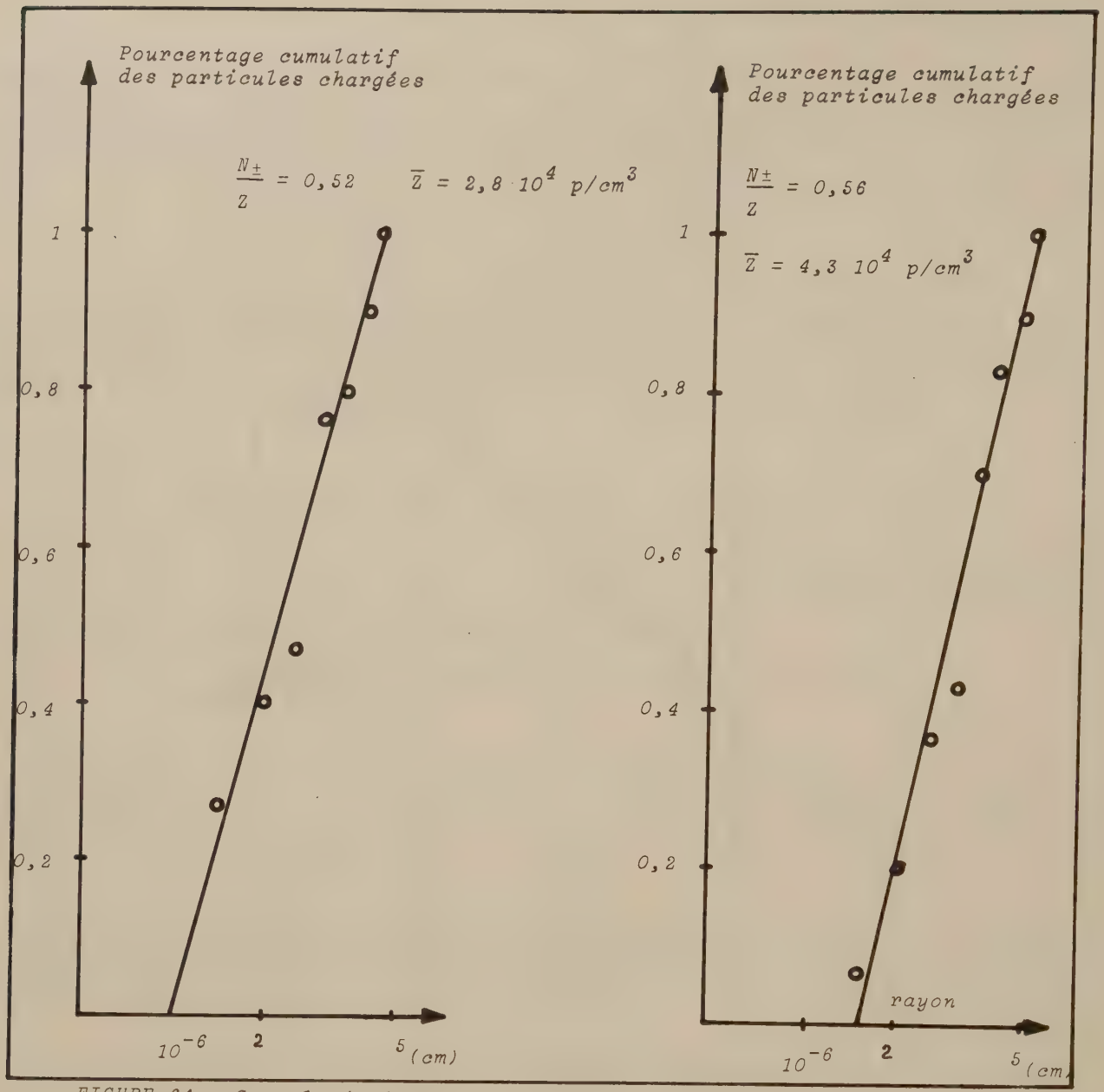



FIGURE 64 : Granulométrie des particules chargées.

### III.3.C - Noyaux de condensation neutres

Après arrêt des particules chargées dans le précipitateur électrostatique plan (qui se trouve à une tension suffisante d'arrêt maximum quel que soit le débit (800 volts)) nous mesurons pour chaque débit d'aspiration le pouvoir d'arrêt de la batterie de diffusion de 200 plaques. Nous obtenons pour chaque série d'expérience des courbes

$$n/n_o = f(Q)$$

identiques en tout point à celles de noyaux de condensation en totalité.

En moyenne (10 expériences) $D_m = 1{,}3.10^{-5} cm^2/s$

$r_m = 3{,}5.10^{-6}$ cm

### III.3.D - Variation de la taille avec la distance

Un locotracteur marchant au ralenti a été choisi comme générateur de noyaux de condensation. La galerie des essais située au N 160 de la mine de Fanay est parcourue par un courant d'air à une vitesse d'environ 0,7 m/s.

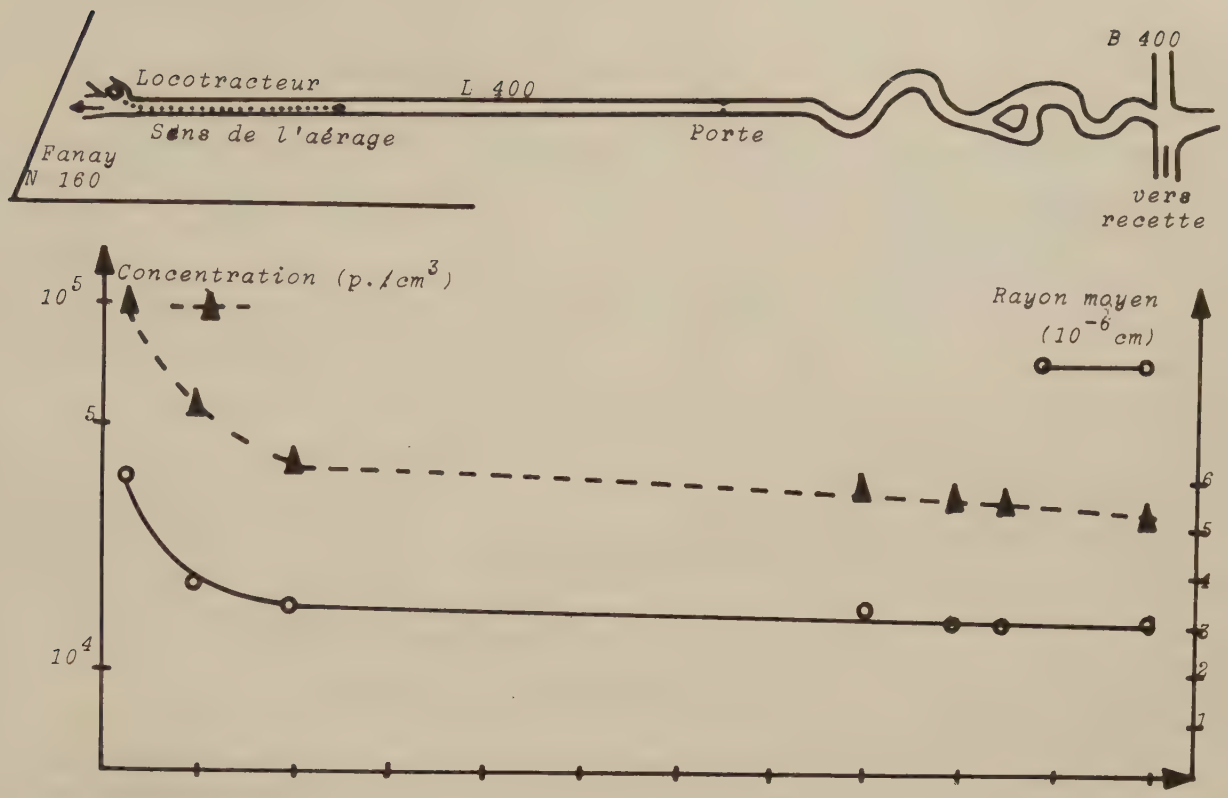



*FIGURE 65* : *Variations de la concentration et du rayon moyen des noyaux en fonction de la distance.*

J'ai étudié l'évolution du rayon moyen des noyaux émis par le locotracteur depuis l'origine jusqu'à 500 mètres de distance. La figure 65 décrit la situation de l'expérience et les résultats obtenus. Il n'a pas été possible de faire des mesures de rayon moyen dans le tuyau même d'échappement car les concentrations y étaient extrêmement fortes (quelques $10^7$ p/cm$^3$) et assez variables. Par contre à quelques mètres de la source génératrice après une forte dilution dans l'air circulant dans la galerie on note des valeurs inférieures à $5.10^5$ p/cm$^3$. Le rayon moyen des noyaux émis par le locotracteur est, à cet endroit, de 6 à $7.10^{-6}$ cm valeur que nous pouvons rapprocher de celles obtenues dans un chantier en activité. Dès que nous nous éloignons le rayon moyen baisse rapidement pour se stabiliser autour de $3.10^{-6}$cm à partir de 400 mètres de distance. Ces mesures quoique très grossières doivent permettre de chiffrer les coefficients de pertes sur les parois pour une galerie donnée (chapitre II, paragraphe II.3.D ).

### *III.3.E - Discussion*

De la même façon que le pourcentage de particules chargées, la taille des aérosols varie de façon importante près d'un chantier (entre $2.10^{-6}$cm et $2.10^{-5}$cm). Les caractéristiques des différentes activités minières sont la cause de telles distorsions.

Dès que l'on s'éloigne du chantier les variations diminuent rapidement et on tend vers un équilibre valable aussi bien pour la totalité des particules que pour les ions et les neutres ; les mesures sont confirmées par les résultats donnés par les différentes méthodes employées.

$$\frac{N^{+}_{-}}{N} = 0,55 \qquad r_M = 3,6.10^{-6}cm$$

III.4 - NATURE

Une étude par diffraction des R X d'un filtre n'a mis en évidence que 2 raies de quartz, noyées dans un nombre important de substances amorphes. Pour une étude de la nature des particules radioactives, il sera nécessaire de prévoir une méthode plus adaptée (spectromètre de flamme, activation neutronique...).

III.5 - PARTICULES RADIOACTIVES

*III.5.A - Spectre granulométrique*

*A.a - Totalité des particules radioactives*

- Méthode des batteries de diffusion

Nous mesurons simultanément à l'aide des CAP 10, la radioactivité $\alpha$ avant, ($N_o$), et après, (N), la batterie de diffusion de 200 plaques pour différents débits d'aspiration (Q). Des mesures faites en 1969 sur un retour d'air général de 3 chantiers (Lo-2) avaient donné une valeur de $D_m$ située autour de $5.10^{-6}cm^2/s$ (correspondant à un $r_m = 6.10^{-6}cm$). Des expériences plus récentes ont été menées au Labo STEP depuis décembre 1969. Dans ce cas des mesures discontinues ont donné des valeurs de $D_m$ comprises entre $1,8.10^{-5}$ $cm^2/s$ et $3,5.10^{-6}cm$ ($r_m$ compris entre 2,8 et $6.10^{-6}cm$). Les mesures de ($N/N_o$) en fonction du débit sont bien plus longues à faire que les mesures de $n/n_o$ pour les noyaux de condensation ; il est donc difficile de trouver de longues périodes de stabilité, ceci explique que le nombre de mesures de ($D_m$) radioactif soit assez faible (30 environ). Malgré cela en période d'activité moyenne la valeur la plus souvent relevée pour Dm est $1,3.10^{-5}cm^2/s$ ($r_m = 3,5.10^{-6}cm$) ; c'est-à-dire une valeur identique à celle trouvée précédemment pour les noyaux de condensation.

- Méthode de mesure de $N_o/Z$

Le pourcentage de particules radioactives chargées au "Labo 120" varie entre 45 et 60 % soit une valeur moyenne de $N^{+}_{-}/N = 0,53 \pm 0,08$ qui correspond à un rayon équivalent de $4.10^{-6}cm$ (dans le cas de l'équilibre de Boltzman) identique à peu de chose près à celui trouvé pour les noyaux de condensation et dans les marges d'erreurs de la valeur trouvée avec les batteries de diffusion.

*A.b - Particules radioactives chargées*

Les mesures ont été menées à l'aide du précipitateur électrostatique fil-cylindre. Dépouillés soit par la méthode de SOILLEUX soit par la méthode RENOUX les spectres s'étendent tous entre $10^{-6}cm$ et $5.10^{-6}cm$. Une quantité négligeable (inférieure à 8 %) de la radioactivité est fixée sur des particules chargées de rayon inférieur à $10^{-6}cm$.

*A.c - Particules radioactives neutres*

Après arrêt des particules chargées dans le précipitateur électrostatique plan (pour une tension interplaque suffisante (800 V)) nous mesurons pour chaque débit d'aspiration le pouvoir d'arrêt de la batterie de diffusion de 200 plaques. Les mesures effectuées au Labo 120 ont donné des courbes $n/n_o = f(Q)$ identiques à celles des particules radioactives en totalité. Sur une moyenne de 8 expériences $D_m = 1,2.10^{-5}$ cm$^2$/s ; $r_m = 3,6.10^{-6}$cm.

Il faut cependant noter que des mesures ont été faites dans la R 443 (Margnac) sur le retour d'air de 3 chantiers. Dans ces conditions la batterie de diffusion de 200 plaques placée après le précipitateur électrostatique plan avait un pourcentage d'arrêt inférieur à 10 %. Cela semblait montrer que l'aérosol radioactif neutre se trouvait dans une gamme de dimension supérieure à 0,1 µ. La proximité des chantiers en activité explique en partie ces résultats.

*A.d - Signe de la charge portée par les ions*

La mesure a été faite en mesurant successivement pour des tensions positives et négatives l'activité piégée par l'électrode axiale du tube à ions. Le rapport $N_R^-/N_R^+$ du nombre de gros ions radioactifs négatifs au nombre de gros ions radioactifs positifs varie entre 1 et 1,2.

*A.e - Petits ions non radioactifs*

La mesure de la concentration en petits ions positifs et négatifs a été faite pendant une semaine au Labo 120. Les ions de mobilité supérieure à 0,4 cm$^2$/s/V sont collectés grâce à un champ électrique établi dans un précipitateur électrostatique fil-cylindre (Lo-2). Le courant créé par les ions recueillis sur la partie centrale de l'anode permet de calculer la concentration en petits ions. Deux précipitateurs sont utilisés permettant la mesure simultanée de $n^+$ et de $n^-$. La figure 66 donne les variations avec le temps de la concentration en noyaux de condensation, en radon, en petits ions positifs et négatifs. On note qu'en moyenne $n^+/n^- = 1,3$. Dans nos conditions expérimentales la concentration en petits ions positifs varie entre $2.10^4$ et $1,2.10^5$ ions/cm$^3$. Les variations de $n^+$ et $n^-$ sont étroitement liées aux variations de la concentration en noyaux de condensation. Ces deux variations sont inversement proportionnelles.

*A.f - Discussion et interprétation*

Dans le paragraphe 3 du chapitre II nous avons vu que :

$$\frac{N_R^-}{N_R^+} = \left(\frac{n^- D^-}{n^+ D^+}\right)^2$$

lorsque le taux d'ionisation est grand ce qui est le cas de l'atmosphère minière. Approximativement $D^-/D^+ = 1,25$ donc aux erreurs d'expérience près

$$\frac{n^+}{n^-} \neq \frac{D^-}{D^+} \neq 1,25 \qquad \text{(chapitre II, § 4.A.e)}$$

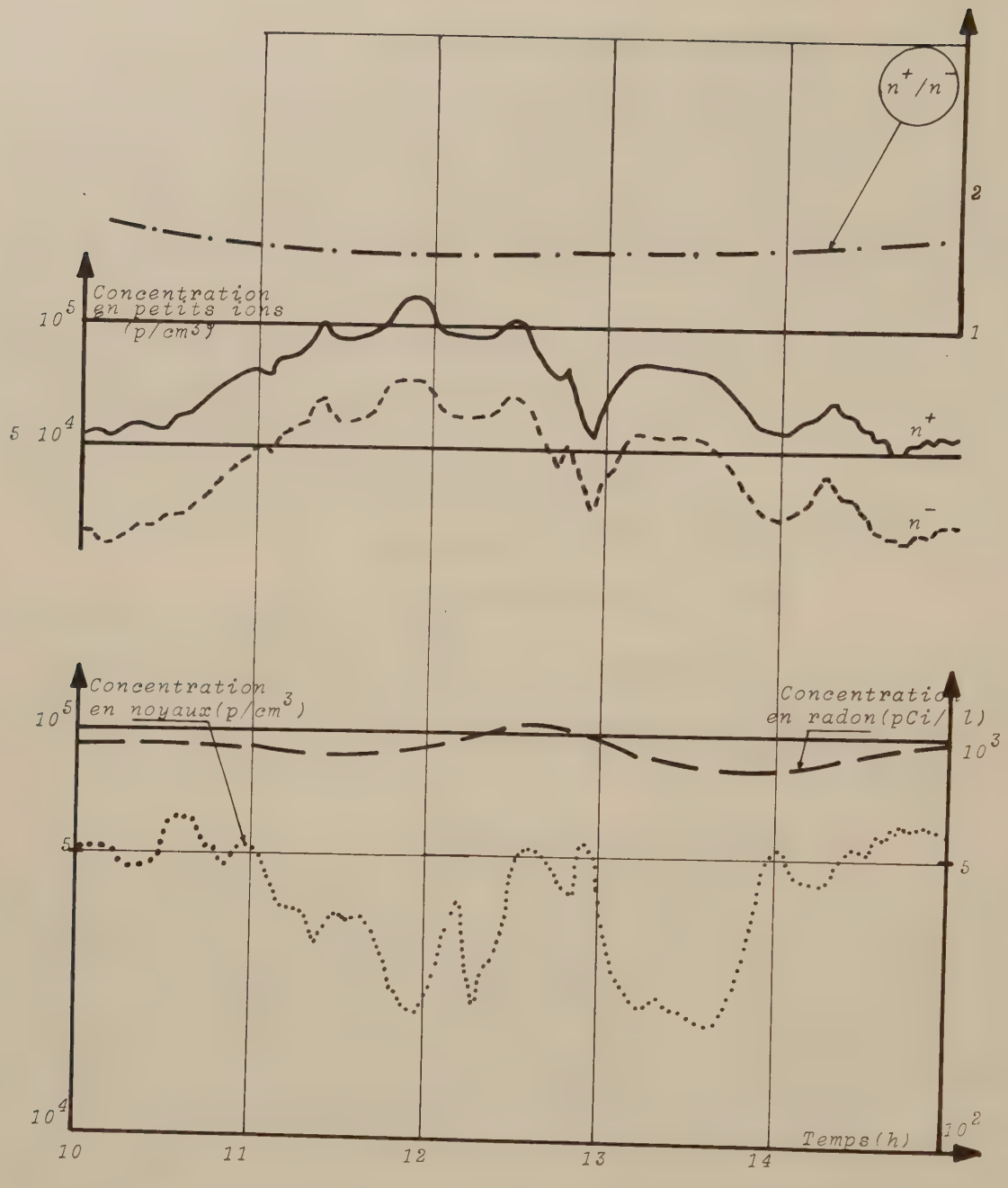



*FIGURE 66: Courbes de variation en fonction du temps de Z, CnRn, $n^+$ $n^-$, $n^+/n^-$.*

$$\text{d'où :} \quad \frac{N_R^-}{N_R^+} \neq 1$$

valeur que nous trouvons expérimentalement.

D'autre part le rapport $n^-/n^+$ des concentrations en petits ions négatifs ($n^-$) et positifs ($n^+$) est une fonction de l'intensité d'ionisation effective Q et de l'empoussiérage N.

$$Q = q - \alpha\, n^+ n^-$$

Q représente le nombre de petits ions de chaque signe effectivement créés par $cm^3$ et

par seconde (q et $\alpha$ ont déjà été définis au chapitre II. § I.2). Les variations théoriques de :

$$\left(\frac{n^- D^-}{n^+ D^+}\right)^2$$

en fonction de $Q/N^2$ ont été traçées par de nombreux auteurs. Si nous prenons le cas expérimental de la figure 66, à 11 heures, nous avons les conditions suivantes :

$$N = 5.10^4 \text{ p/cm}^3$$
$$C_R = 900 \text{ pCi/l}$$
$$n^- = 5.10^4 \text{ p/cm}^3$$
$$n^+ = 6{,}5.10^4 \text{ p/cm}^3$$

En tenant compte des concentrations en radon et descendants et des radiations venant des parois on peut évaluer q à environ $6.10^3$ paires d'ions créées par seconde. Dans ce cas, $Q = 8.10^2$ paires d'ions et $Q/N^2 = 3{,}2.10^{-7}$ et cela correspond par lecture sur la courbe théorique à

$$\left(\frac{n^- D^-}{n^+ D^+}\right)^2 = \frac{N_R^-}{N_R^+} \# 1{,}08$$

Valeur qui est du même ordre de grandeur que celles données par l'expérience.

D'un autre côté, si nous étudions les valeurs expérimentales, nous notons :

$$\frac{N_R^-}{N_R^+} = 1{,}1$$
$$N_R^- + N_R^+ = 0{,}53$$
$$N_R^\circ = 0{,}47$$
$$N_R^- = 0{,}28$$
$$N_R^+ = 0{,}25$$

D'où : $\frac{N_R^\circ}{N_R^-} = 1{,}7$ ; $\frac{N_R^\circ}{N_R^+} = 1{,}9$

Nous avons vu au paragraphe 3 du chapitre II que $N_R^\circ/N_R^- = \beta_+^-/\beta_\circ^-$ et que les variations de ce rapport en fonction du rayon des particules est donné sur la figure 54B A la valeur de 1,7 correspond un rayon de $4.10^{-6}$cm qui confirme les résultats expérimentaux obtenus. De nombreux chercheurs ont étudié les valeurs de $(N^+/N^-)_R$ et de $N^\circ/N^+)_R$ dans différentes conditions. Je rassemble dans le tableau ci-dessous leurs valeurs pour les comparer avec les nôtres.

| | RENOUX (air naturel) | MADELAINE (air enrichi) | mines d'uranium |
|---|---|---|---|
| $N_R^-/N_R^+$ | 0,28 | 1,56 | 1,1 |
| $N_R^\circ/N_R^+$ | 3,8 | 2,2 | 1,9 |

On s'aperçoit que les différences sont très sensibles. MADELAINE (Ma-4) a montré expérimentalement qu'en maintenant Q constant et en augmentant N, on aboutit à une diminution de $N_R^-/N_R^+$.

Nous observons expérimentalement que les concentrations en petits ions positifs sont supérieurs à celles des petits ions négatifs. Ceci peut s'expliquer par le fait que les petits ions négatifs ont un coefficient de diffusion plus élevé que celui des positifs.

III.6 - Discussion sur les différents points expérimentaux

Le tableau 15 résume les caractéristiques essentielles des aérosols miniers.

*III.6.A - Concentration en particules*

On explique aisément les fortes baisses des concentrations en particules que nous observons entre la génération et les différents points de mesure par l'influence des différents paramètres décrits au chapitre II. Une forte coagulation turbulente associéeà un important dépôt en sont les principaux responsables. Il sera nécessaire dans une étude future d'étudier expérimentalement les effets de ces deux phénomènes sur chaque activité minière.

*III.6.B - Etat de charge des particules*

Il n'a pas été possible de mesurer le nombre de charges portées par les particules ; c'est un point très important à étudier et à mettre au point car il conditionne les mesures par précipitateur électrostatique. On note cependant que chaque opération minière est un cas particulier de génération de particules chargées, cela se traduit par une importante dispersion des résultats obtenus.

Ces quelques résultats fragmentaires ne permettent pas d'expliquer clairement les phénomènes ; en effet la plupart du temps il y a interpénétration des différentes activités minières et il est très difficile de faire la part de chacune d'entre elles. Il faudra donc dans une étude future analyser séparément chaque activité minière pour en comprendre les mécanismes de génération et de charge (dans la mine expérimentale de Tennelles par exemple).

Il semble que l'état de charge d'un nuage particulaire varie suivant son temps de séjour dans la mine et que l'on tende vers un équilibre. On peut expliquer ce fait par l'intense ionisation existante et par le fait que les particules portant à l'origine de nombreuses charges sont éliminées plus rapidement que les autres.

*III.6.C - Taille*

A leur origine et à proximité de leur source les aérosols miniers ont des granulométries très différentes selon l'activité minière. En s'éloignant des chantiers ou des sources de particules (locotracteurs, chantiers...) on observe que la taille des particules diminue (quelques $10^{-5}$cm → $3.10^{-6}$cm). Si la coagulation était le phénomène le plus important on noterait au contraire une augmentation en taille. Ce n'est pas le cas. Il faut donc attribuer cette diminution à un important dépôt sur les parois

| | | RETOUR D'AIR Origine des aérosols miniers lointaine (30 minutes) N = normale | | | RETOUR D'AIR Origine des aérosols lointaine mais inactivité prolongée (nuit...) N=qq $10^3$p/cm$^3$ | | | PROXIMITE DE CHANTIER Origine des aérosols inférieure à 600 s ; N = qq $10^5$ p/cm$^3$ | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | chargés | neutres | totalité | chargés | neutres | totalité | chargés | neutres | totalité |
| Aérosols radioactifs | R. moyen (cm) | $3,5.10^{-6}$ | $3,5.10^{-6}$ | $3,5.10^{-6}$ | | | | | supérieur à $10^{-5}$ | $6.10^{-6}$ |
| | (%) $r<10^{-6}$ | | | < 8 | jusqu'à 15 | jusqu'à 10 | jusqu'à 25 | | | |
| | (%) $10^{-6} \leq r < 10^{-5}$ | 53 | 47 | | 50 | | | 55 | 45 | |
| | (%) $r>10^{-5}$ | 0 | 0 | | | | | | | |
| | Remarque | | | | | | | charges multiples | | |
| Noyaux de condensation | R. moyen (cm) | $3,5.10^{-6}$ | $3,5.10^{-6}$ | $3,5.10^{-6}$ | | | | | | |
| | (%) $10^{-6} \leq r < 10^{-5}$ | 55 | 45 | | | | | 15 à 80 | 20 à 75 | |
| | (%) $r>5.10^{-5}$ | | | 0,3 | | | | | | |
| | Remarque | | | | | | | charges multiples | | |

TABLEAU 15

Caractéristiques des aérosols miniers.

favorisé par la forte turbulence régnant dans la majeure partie des galeries minières.

*III.6.D - Nature*

On n'a pas noté de différences importantes entre les caractéristiques des noyaux et celles des aérosols radioactifs. Cela s'explique aisément par le fait que les aérosols radioactifs ne sont obtenus que par fixation d'un petit ion radioactif sur un noyau. Cela a un grand intérêt car on pourra extrapoler les mesures de noyaux aux caractéristiques des aérosols radioactifs.

*III.6.E - Conclusion partielle*

Essayons de la même façon qu'en première partie de décrire l'évolution des particules dans l'atmosphère de la mine. Au chantier, source potentielle la plus importante de noyaux et aussi d'aérosols ultrafins radioactifs, chaque activité minière est un cas particulier. Lors d'un tir moyen (par exemple 1 kg d'explosif dans un filon granitique) se forment entre $10^{14}$ et $10^{16}$ particules. Cette concentration est très élevée et la coagulation est extrêmement rapide : en fait le nombre de particules présentes par $cm^3$ après quelques minutes de contact est indépendant de la concentration initiale. D'après GREEN et LANE (Gr-1), le temps nécessaire pour obtenir 2,5 millions de particules par $cm^3$ est pratiquement le même que l'on parte de $5.10^{12}$ ou $5.10^{8}$ particules/$cm^3$). Dans cette atmosphère à densité particulaire très élevée les aérosols ultrafins se fixent très rapidement ($5.10^{-2}$s) sur les noyaux présents. La taille importante (supérieure à $6.10^{-6}$cm) de ces noyaux ainsi que leur mode de formation implique que ces particules portent un nombre considérable de charges. Pour ma part je n'ai pu vérifier que la fraction de particules chargées par rapport à la totalité. Le fait de connaître le nombre de charges portées par chaque particule devra être un point extrêmement important à éclaircir car il conditionne, en partie, l'étude des aérosols chargés par précipitation électrostatique. On doit observer que la fraction de noyaux chargés par rapport à la totalité varie de façon conséquente entre les activités minières : cela provient de la nature même de cette activité. Il sera nécessaire dans l'avenir de séparer et d'analyser chaque activité minière hors de son contexte (cela pourra être fait dans la mine expérimentale de Tennelles).

Lorsqu'on s'éloigne des chantiers la concentration en noyaux diminue considérablement (pertes sur les parois). Pour un $\theta$ (temps de vie des aérosols entre le chantier et le point d'expérimentation) compris entre 150 et 300 secondes, les caractéristiques des aérosols radioactifs et des noyaux de condensation sont difficilement interprétables, (nombreuses charges portées par les aérosols interférant sur les mesures avec précipitateur électrostatiques et batterie de diffusion). On note cependant que très peu de noyaux, radioactifs ou non, existent dans la gamme inférieure à $8.10^{-7}$ cm et dans la gamme supérieure à $5.10^{-5}$cm.

Pour un $\theta$ supérieur à 1600 secondes (retour d'air lointain), les caractéristiques physiques des aérosols semblent avoir atteint un certain équilibre ; les perturbations créées par des activités minières lointaines ne produisent que de faibles variations. Les rayons moyens des aérosols radioactifs et des noyaux de condensation semblent identiques ($r_m = 3,5 \pm 0,5.10^{-6}$cm) ; le pourcentage de particules (radioactives ou non) ionisées est de l'ordre de 53 ± 8 %. Peu de particules sont observées

pour des tailles inférieures à $5.10^{-7}$cm et supérieures à $2.\ 10^{-5}$cm car elles sont éliminées rapidement par sédimentation, impaction et dépôt turbulent. L'inexistence de concentration notable de petites particules confirme le fait déjà noté par FUCHS qu'on ne trouve pas dans un nuage particulaire de particules de dimensions beaucoup plus petites que la moyenne même si elles existaient initialement car elles sont rapidement fixées par les plus grosses.

Il semble donc, qu'au bout d'un temps relativement faible, les caractéristiques essentielles (taille, état de charge) des noyaux de condensation et des aérosols radioactifs soient identiques.

## CONCLUSION

Les résultats obtenus dans ce travail permettent de tirer les conclusions suivantes :

1° Les sources de radon sont surtout localisées dans les chantiers et les vieux travaux. L'apport des galeries est très faible (moins de 1 pCi/l). A proximité des chantiers les variations de concentration en radon sont très importantes (jusqu'à un facteur 10) et liées à l'activité minière.

2° Les concentrations en descendants sont du même ordre de grandeur que les concentrations en radon (80% des mesures donnent des valeurs inférieures à 200 pCi/l). Les fractions d'équilibre entre le radon et ses descendants sont différentes pour les chantiers et pour les galeries.

La radioprotection pour le radon et ses descendants, telle qu'elle est faite en France (mesure du radon seul et application d'un facteur correctif 0,5 ) possède une marge de sécurité car dans 90% des mesures expérimentales $f_{ABC} = 1/3\ (f_A + f_B + f_C)$ est inférieur à 0,5. Cependant il faut noter que d'une part, de rapides variations des concentrations en radon et en descendants peuvent se produire en un lieu donné en fonction des activités minières ; d'autre part un mineur affecté à un lieu de travail ne passe pas tout son temps à ce lieu là (maintenance du matériel à la recette, trajet, pauses, avant-tir, transport du minerai...) . Ainsi à une radioprotection globale fondée sur de nombreux prélèvements en de nombreux endroits pourrait avantageusement, du point de vue théorique, être substituée une radioprotection individuelle seule représentative de la nocivité des différentes atmosphères respirées par un travailleur dans son travail souterrain.

3° Un modèle numérique permettant d'étudier par simulation l'influence de divers paramètres (ventilation, sources de radon,...) sur l'équilibre radon-descendants, a été mis au point. Confronté avec l'expérience, dans un secteur d'une mine d'uranium, il a donné entière satisfaction. On peut ainsi, grâce à lui, faire la part exacte des différents facteurs qui intéragissent dans une mine d'uranium.

4° Le fait de négliger dans nos expériences les concentrations en thoron et en actinon a été confirmé par une série d'expérimentations effectuées au fond de la mine à l'aide d'un analyseur 400 canaux ; l'existence de descendants de ces deux gaz a été mise en évidence mais leur contribution à la radioactivité globale est négligeable.

5° Les conditions minières m'ont conduit à concevoir et à réaliser des appareils spécifiques : spectromètre $\alpha$ autonome permettant des analyses fines des concentrations en descendants ; compteurs de noyaux de condensation (autonomes aussi).

Ces appareils ont donné les preuves de leur fiabilité lors de nombreuses campagnes de mesures.

6° Pour des expériences faites loin des chantiers, on n'a pas noté de différences importantes dans la taille et l'état de charge des particules radioactives et des noyaux de condensation. Le profil moyen des caractéristiques se résume ainsi :

$$\left(\frac{N^{\pm}}{N}\right)_{\text{radioactif}} \# \left(\frac{N^{\pm}}{N}\right)_{\text{noyaux}} = 0,55 \pm 0,08$$

$$\left(\frac{N^{+}}{N^{-}}\right)_{\text{radioactif}} = 1,1 \pm 0,1$$

$$(r_m)_{\text{radioactif}} \# (r_m)_{\text{noyaux}} = 3,5 \pm 0,5.10^{-6}\text{cm}$$

(à la fois pour les particules chargées, les particules neutres, et la totalité des particules).

Il ne semblerait pas qu'il y ait de déposition préférentielle de la radioactivité : c'est un point très important car ainsi on peut étudier les caractéristiques des noyaux de condensation et définir les aérosols radioactifs par ces caractéristiques.

7° On a mis en évidence l'existence de particules radioactives ultrafines en quantité négligeable pendant les activités minières, et importante (20 %) en période d'arrêt prolongé (fin de semaine, vacances...). La concentration de telles particules (et leur durée de vie) est étroitement liée aux concentrations en radon et en noyaux de condensation et donc aux activités minières ; on peut décrire simplement cette concentration par :

$$f = \frac{\lambda_A}{K(\beta + \lambda_A)}$$

K... constante caractéristique de l'expérience
β... coefficient de fixation.

Le calcul de la $CMA_{40h}$ pour le radon et ses descendants proposé par l'I.C.R.P. et basé sur la connaissance de "f" entraîne donc des valeurs variables selon la concentration en radon et en noyaux de condensation (donc selon le lieu et le temps). Cela nuit donc à l'utilisation de cette norme.

8° A proximité des chantiers, on note que chaque activité minière est un cas particulier de génération, de taille, d'état de charge des noyaux. Lors d'un tir, par exemple, il y a émission de quelques $10^6$ particules par $cm^3$ de rayon moyen supérieur à $10^{-5}$ cm et dont près de 80% sont chargées. Par contre, lors d'une foration, la concentration est légèrement inférieure mais la fraction chargée est bien plus faible (entre 20 et 30 %) et la taille aussi (entre 3 et 6.10-6 cm).

9° En prenant le chantier comme point d'origine, si nous nous en éloignons, nous notons une atténuation des fluctuations et une tendance vers un équilibre caractérisé par les valeurs données en 6°.

Cela se traduit surtout par une diminution du rayon moyen. Pour comprendre ce phénomène, il faut faire intervenir des pertes sur les parois qui contrebalancent l'influence de la coagulation.

Toutes ces conclusions ((1)→(9)) permettent de se faire une idée plus complète de cette atmosphère particulière qu'est le milieu souterrain. En fait, on peut considérer ce milieu comme un cas particulier de l'atmosphère libre ; simplement la limitation de l'espace y accélère certains processus : perte par dépôt, coagulation turbulente...

Ainsi les techniques de mesure et les appareillages mis au point pourront être, avec fruit, utilisés en atmosphère libre (compteurs de noyaux, précipitateurs...).

Dans cette étude, je me suis volontairement limité à l'étude des paramètres importants de l'atmosphère minière : d'une part le radon et ses descendants et leur devenir ; d'autre part la taille, l'état de charge et la concentration des particules présentes.

Il est bien évident que l'étude entreprise est de longue haleine et que de nombreux points restent à résoudre :

- influence de l'ionisation, de la turbulence sur la taille et l'état de charge des particules ;
- caractérisation exacte de chaque source d'aérosols ;
- ...

La mine expérimentale de Tenelles peut être le cadre idéal pour la continuation d'une telle étude. Une fois exactement connues, les conditions de ventilation, de pression, de génération...,d'importantes études sur l'évolution de l'aérosol minier pourraient y être entreprises en se servant des résultats acquis dans ce travail.

# G L O S S A I R E

| | |
|---|---|
| AERAGE | nom minier d'aération |
| AGGLOMERATION | coagulation = coalescence |
| ANGSTROM (Å) | $10^{-8}$cm = $10^{-4}$ µ |
| AVANCEMENT (chantier en) | chantier situé en front d'une galerie |
| BERGKRANKHEIT | mountain sickness = non original du cancer du poumon |
| BRONCHES | nom donné aux conduits faisant suite à la trachée et par lesquels l'air pénètre dans les poumons |
| CANAR | nom minier des conduits d'aérages |
| C.A.P. 10 | contaminamètre atmosphérique portatif |
| C M A | concentration maximale admissible |
| CURIE | quantité de radioactivité correspondant à 2,22 $10^{12}$ des./min |
| DEPILAGE | travail de sape permettant de réunir 2 niveaux |
| DESINTEGRATION | action caractéristique de la radioactivité |
| DOSE | grandeur définissant l'énergie dissipée par un rayonnement dans un corps |
| GALERIES | ouvrage minier |
| HISTOGRAMME | distribution en fréquence de la valeur arithmétique moyenne |
| I C R P (en français CIPR) | International Commission of Radiological Protection |
| JOACHIMSTALL | mine de Tschécoslovaquie |
| MeV | million d'électron volt d'énergie |
| MICRON (µ) | $10^{-4}$cm = $10^{4}$ Å |
| MONTAGE | ouvrage permettant de relier deux niveaux |
| NORME | borne de la dose |
| PUITS | conduit de descente du personnel et de remontée du minerai |
| PICOCURIE (pCi) | $10^{-12}$ Curie = 2,22 des./min |
| Rad | unité d'énergie déposée par unité de masse |
| RADIUM (A, B, C) | descendants radioactifs solides du radon |
| RADON | gaz rare radioactif |
| RECETTE | lieu de collection du minerai à chaque niveau correspondant au puits |
| RECOUPE | tronçon de galerie de recherche |
| Rem | roentgen - équivalent - man ; dose en rem = dose en rad x E B R |
| SCHNEEBERG | mine d'Allemagne |
| SCRAPPAGE | action de racler le minerai pour l'amener près du lieu de chargement |
| STERILE | très faible teneur en minerai |
| S.T.E.P | Service Technique d'Etude de Protection |
| SKIP | cage servant à remonter le minerai au jour |
| TRAVERS-BANC | galerie recoupant les filons minéralisés |
| TRAÇAGE | action équivalente à chantier en avancement |
| TRACHEE | tube débutant au larynx et conduisant l'air aux bronches et aux poumons |

## PRINCIPALES NOTATIONS UTILISEES

| | | Unité ou valeurs des constantes |
|---|---|---|
| A | : Constante..... | |
| D | : Coefficient de diffusion..... | $cm^2/s$ |
| $D_A$ | : Coefficient de diffusion apparent..... | $cm^2/s$ |
| E | : Champ électrique..... | Volt/cm |
| K | : Constante de Boltzman..... | $1,38.10^{-16}$ erg/degré |
| L | : Longueur..... | cm |
| $f_{ABC}$ | : W L R américain..... | |
| M | : Masse moléculaire..... | |
| N = Z | : Nombre total de particules..... | particules/$cm^3$ |
| Q | : Débit d'air..... | $cm^3/s$ |
| R | : Rayon de cylindre ou de sphère..... | cm |
| Re | : Nombre de Reynolds..... | |
| Rα | : Radioactivité α totale..... | désintégrations/s |
| T | : Température absolue..... | degré Kelvin |
| V | : Vitesse d'une particule..... | cm/s |
| V | : Tension..... | volts |
| Vm | : Vitesse moyenne..... | cm/s |
| Z = N | : Nombre total de particules..... | particules/$cm^3$ |
| e | : charge élémentaire..... | $4,8.10^{-10}$ cgses<br>$1,6.10^{-20}$ cgsem |
| $f_A$, $f_B$, $f_C$ | : fraction d'équilibre..... | |
| g | : accélération dûe à la pesanteur..... | 981 $cm/s^2$ |
| k | : mobilité..... | $cm^2/s/V$ |
| $k_1$ | : mobilité limite..... | $cm^2/s/v$ |
| $l_{et}$ | : longueur d'établissement..... | cm |
| m | : masse de particule..... | |
| n | : nombre de particules au temps t..... | particules/$cm^3$ |
| $n_o$ | : nombre de particules à l'instant initial.. (t = 0) | particules/$cm^3$ |
| p | : nombre de charges..... | |
| r | : rayon de la particule..... | cm |
| $r_a$ | : rayon apparent..... | cm |
| $r_m$ | : rayon moyen..... | cm |
| t | : variable de temps..... | secondes |
| γ | : densité de particules..... | $g/cm^3$ |
| η | : viscosité de l'air..... | $1,83.10^{-4}$ poise |
| ν | : viscosité cinématique = η/γ..... | 0,138 Stockes (pour l'air) |
| λ | : libre parcours moyen des molécules d'air.. | $9,41.10^{-6}$ cm |

## NOTATIONS SUR PLAN

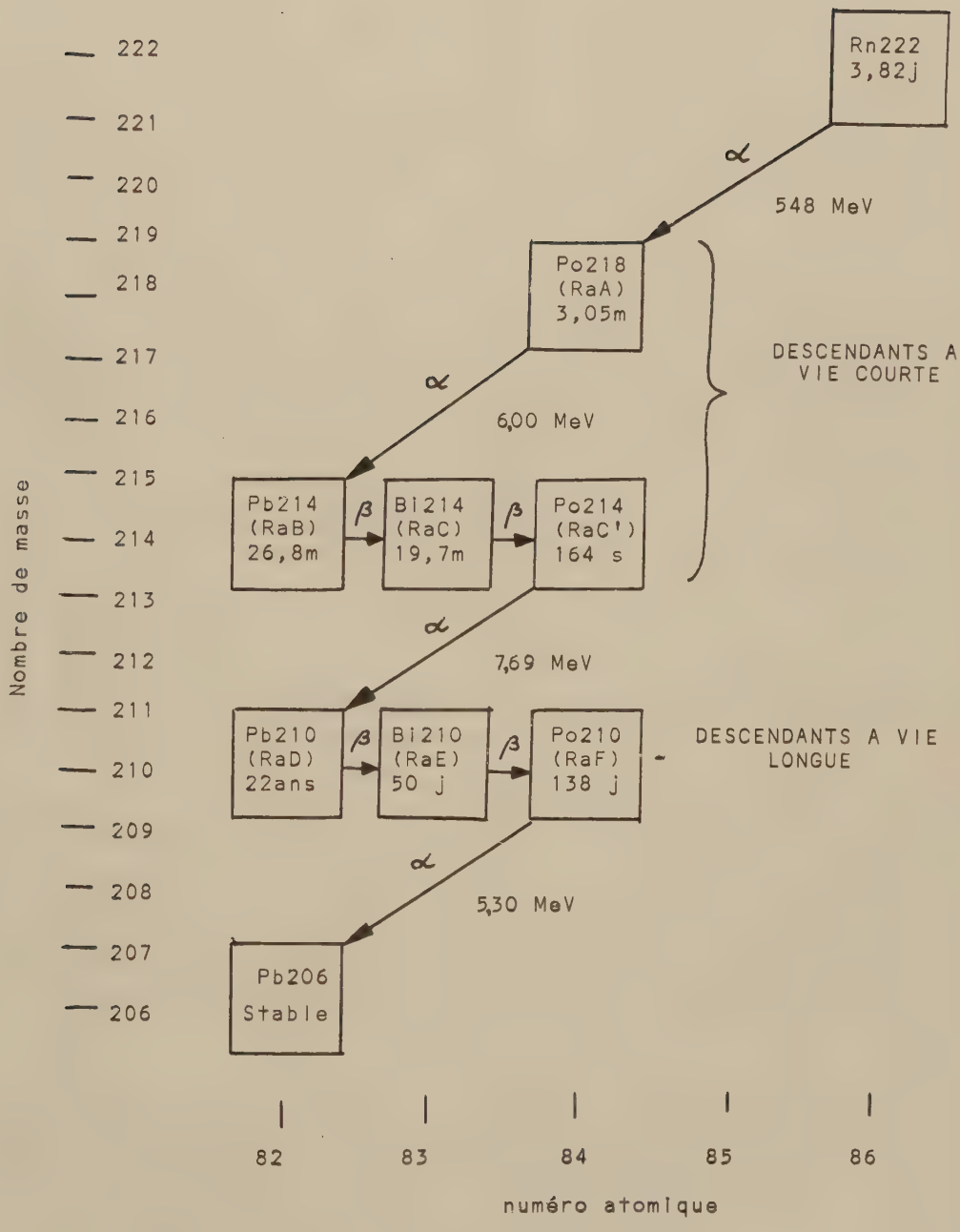
G. ou L. ou B..... galerie
D..... dépilage
M..... montage
R..... recoupe
T.B..... travers-banc

*(chacune de ces lettres est suivie d'un nombre dont le premier chiffre est relatif au niveau ; exemple : L. 416, correspond à une galerie située au quatrième niveau.)*

*N..... niveau*

*(suivi d'un chiffre indiquant la profondeur en mètres par rapport à un point de référence, au jour).*

ANNEXE I




SCHEMA DE DESINTEGRATION DU RADON (Rn 222)

| Nom usuel | Nucléide | Energie α (MeV) | Energie β maximale (MeV) | Photon γ par désintégration | Période |
|---|---|---|---|---|---|
| Radon | 86 $Rn^{222}$ | 5,90 | nulle | nuls | 3.823 jours |
| Radium A | 84 $Po^{218}$ | 5,998 | nulle | nuls | 3.05 min |
| Radium B | 82 $Pb^{214}$ | nulle | 0,59 - 56 %<br>0,65 - 44 % | nombreux | 26.8 min |
| Radium C | 83 $Bi^{214}$ | nulle | 3,18 - 19 %<br>1,51 - 40 % | nombreux | 19.7 min |
| Radium C' | 84 $Po^{214}$ | 7,68 | nulle | nuls | $2,73.10^{-6}$ min |

Radiations prédominantes du Radon 222 et de ses descendants à vie courte.

ANNEXE II

RADIOPROTECTION DANS LES MINES D'URANIUM FRANCAISE

(d'après ZEGERS (J.C.),PRADEL(J.),BILLARD (F.)
Bulletin d'information ATEN n°81, 1970)

GENERALITES

Le Commissariat à l'Energie Atomique est le principal producteur français d'uranium, car sa part est de 1000 tonnes de métal sur une production métropolitaine de 1100 tonnes. Les mines du CEA sont regroupées en trois divisions : LA CROUZILLE, LE FOREZ, LA VENDEE. Les gisements d'uranium exploités en France se présentent généralement sous forme de filons fortement pentés ou d'amas dans les granites. Leur exploitation est assez semblable à celle des gisements métallifères classiques :

- exploitation à ciel ouvert dans les amas ou têtes de filons proches de la surface (Le Brugeaud...) ;
- exploitation souterraine par diverses méthodes.

Les mines d'uranium présentent toutefois quelques particularités spécifiques qui leur donnent une physionomie propre :

- basses teneurs des minerais (1 à quelques kilogrammes de métal à la tonne) ;
- dispersion des minéralisations ;
- coût élevé de la concentration,

tous facteurs qui impliquent des méthodes assez fines et un contrôle géologique étroit ;

- radioactivité des minerais qui joue un rôle favorable important pour l'identification des parties exploitables, mais qui bien sûr, entraîne des sujétions d'exploitation.

Les travaux de recherche et d'exploitation dans les mines d'uranium exposent le personnel à des irradiations externes globales, à des irradiations internes dues à l'inhalation des poussières et de gaz radioactifs, et à des contaminations corporelles.

NUISANCES ET NORMES

Irradiation externe

L'uranium et ses descendants contenus dans le minerai émettent des rayonnements gamma et bêta, dont une partie n'est pas absorbée par le minerai lui-même et

parvient au centre des galeries. Les mesures montrent que l'intensité d'irradiation est pratiquement proportionnelle à la richesse du minerai. Ainsi, pour une teneur de 1‰, l'intensité est de 0,5 millirem par heure.

La limite maximale admissible (LMA) fixée à 5 rems par an, correspond, pour un travail de 40 heures par semaine, à une intensité de 2,5 millirems par heure. On voit donc que cette limite moyenne est atteinte dès que la teneur des minerais avoisine 5‰.

Irradiation interne

Comme dans toutes les mines, les travaux d'exploitation ont pour résultat de mettre en suspension sous forme de poussières une partie des minerais. La concentration maximale admissible (CMA) pour des poussières de minerai a été fixée égale à $3,5\ 10^{-14}$ curies par litre d'air pour une exposition de 8 heures par poste et 264 postes par an.

Dans les mines d'uranium une autre source de contamination atmosphérique provient de l'existence du radon qui possède des descendants radioactifs solides de courte période. Etant donné l'existence de la ventilation, le radon ne reste pas suffisamment longtemps dans la mine pour se trouver en équilibre avec ses descendants. La concentration maximale admissible (CMA) pour le radon en équilibre avec ses descendants a été fixée en France à $3\ 10^{-10}$ Ci/l (norme Euratom) pour tenir compte du travail réel de 8 heures par poste et 264 postes par an (cf. introduction).

Le règlement minier autorise en outre l'application d'un facteur de déséquilibre égal à 2.

Le problème de la contamination corporelle ne présente aucune acuité dans les mines et il n'existe pas de norme précise pour cette nuisance.

CONTROLES

Irradiation externe

La surveillance de l'irradiation est effectuée à l'aide de films individuels et de stylos dosimètres. Chaque agent est muni d'un film personnel qui est distribué et échangé tous les mois. Dans les chantiers minéralisés un contrôle est fait par compteur Geiger. Pour une intensité d'irradiation supérieure à 2,5 millirems par heure un contrôle par stylos dosimètres est organisé.

Irradiation interne

Poussières à vie longue

Le règlement prévoit un prélèvement par poste de travail et par mois pour les lieux où il n'y a pas abattage (galeries, recettes) et trois prélèvements au moins pour les chantiers. Le prélèvement dure de 10 à 20 minutes à un débit d'aspiration de 260 l/min au travers d'un filtre de 110 millimètres de diamètre utile. L'activité $\alpha$

de ce filtre est mesurée 3 jours après le prélèvement.

Radon

Le règlement prévoit 1 ou 3 prélèvements par poste de travail et par semaine. Ces prélèvements sont effectués à l'aide de flacons scintillants de 125 $cm^3$ (cf. chapitre I). Le contrôle des produits de filiation n'est pas prévu par le règlement.

Exploitation des contrôles

Les résultats des mesures de concentration dans chaque chantier, d'une part, les temps passés par chaque agent dans les différents chantiers, d'autre part sont communiqués à un centre mécanographique qui calcule des doses mensuelles inhalées par chaque agent. A ces doses individuelles internes sont ajoutées les doses individuelles externes résultant du développement des films. Les doses relatives correspondant aux trois expositions du poumon : irradiation externe, radon et poussières sont ensuite calculées puis cumulées à l'échelle du trimestre et de l'année. Des fiches individuelles sont établies mécanographiquement ; elles permettent un contrôle continu des doses et la comparaison des cumuls aux limites trimestrielles et annuelles règlementaires. Par ailleurs, différents états statistiques sont établis mécanographiquement, mensuellement, trimestriellement, annuellement par étage, par siège et par division.

MOYENS DE PREVENTION

Irradiation externe

Il n'existe aucun moyen de prévention efficace et seule la rotation du personnel (fait exceptionnel) est utilisée.

Irradiation Interne :

- L'accès direct aux formations minéralisées est évité le plus possible. On procède par traçage en stérile, puis par travers-banc. On utilise des méthodes permettant une évacuation rapide du minerai et la constitution de chantiers de petites dimensions.

- On isole par des barrages les quartiers ou chantiers dont l'accès n'est pas indispensable ; on cimente ou canalise certaines arrivées d'eau.

- Les marteaux perforateurs sont à injection d'eau, le minerai est arrosé d'eau.

- L'aérage joue un grand rôle dans la prévention des risques. Pour une mine métallique ordinaire le règlement prévoit 50 l/s au minimum par ouvrier ; cette valeur est très insuffisante dans les mines d'uranium. Une moyenne de 1,5 $m^3/s$ par ouvrier est utilisée dans les mines du C.E.A.. Pour permettre une meilleure prévention le circuit de ventilation est fractionné en plusieurs circuits indépendants. Dans les travaux en cul de sac il est nécessaire de forcer l'aérage par des ventilateurs secondaires.

Un effort particulier a été fait ces dernières années pour mesurer régu-

lièrement tous les paramètres caractéristiques des réseaux d'aérage et les introduire dans un programme de calcul par ordinateur qui permet de prévoir l'incidence de toute modification de ces réseaux et d'optimiser les puissances de ventilation installées.

## ANNEXE III

### DEFINITIONS DU Eαt (W.L.ET DU WLR)

Eαt

Aux Etats-Unis, on utilise la notion de Working Level (W.L.) pour tenir compte des énergies α libérées par les descendants du radon. Le Working Level que nous appellerons Energie α totale (Eαt) correspond à l'énergie α totale libérée par le RaA et le RaC' dans un litre d'air contenant une CMA de radon (Br-5).

A l'équilibre un litre d'air contenant $10^{-10}$ Ci/l de chaque descendant comprend approximativement :

- 980 atomes de RaA
- 8570 atomes de RaB (qui se désintègrent pour donner du RaC' émetteur α)
- 6370 atomes de RaC, qui libèrent directement ou indirectement :

. 980 (6 + 7,69) = 0,134 $10^5$ MeV
. 8570 (7,69) = 0,659 $10^5$ MeV
. 6370 (7,69) = 0,490 $10^5$ MeV

Soit..... 1,283 $10^5$ MeV ≠ 1,3 $10^5$MeV

Pour calculer l'énergie α totale délivrée par un mélange de radon et de ses descendants il suffit de multiplier la concentration en activité (en $10^{-10}$Ci/l) de chaque descendant par le coefficient en énergie correspondant :

- 0,134 $10^5$ pour le RaA
- 0,659 $10^5$ pour le RaB
- 0,490 $10^5$ pour le RaC

La contribution de chaque descendant à l'équilibre à l'Eαt est :

- pour le radium A : 0,134/1,28 = 0,104
- " radium B : 0,659/1,28 = 0,514
- " radium C : 0,490/1,28 = 0,382

W L R

Pour chiffrer l'équilibre global entre le radon et ses descendants les services de sécurité américains ont introduit un "équilibrium ratio" appelé aussi "working level ratio" (WLR) défini ainsi :

$$W\ L\ R = 100\ \frac{E\alpha t}{\lambda_R Q_R}$$

$\lambda_R Q_R$ est l'activité du radon (en pCi/l). En France un facteur identique, $f_{ABC}$ a été introduit pour évaluer globalement le déséquilibre :

$$f_{ABC} = \frac{f_A + f_B + f_C}{3}$$

et $WLR = 0{,}104\ f_A + 0{,}514\ f_B + 0{,}382\ f_C$

d'où $WLR = f_{ABC} - 0{,}23\ f_A + 0{,}18\ f_B + 0{,}05\ f_C$

## ANNEXE IV

## ETUDE EXPERIMENTALE ET SUR MODELE DU DEPOT DES AEROSOLS DANS LE SYSTEME RESPIRATOIRE

### DIFFERENTES CMA PROPOSEES

De nombreuses études ont été menées de par le monde pour définir une concentration maximale admissible (CMA) pour le radon, facilement applicable et susceptible de recevoir un agrément unanime. Jusqu'à présent ces études n'ont pas abouties. Il suffit pour s'en convaincre de regarder le tableau 2 donné en avant-propos.

On note que les CMA radon préconisées par l'ICRP (1959 et f = 0,10) et utilisées aux Etats-Unis sont plus sévères que celles utilisées en France à l'AIEA et à l'Euratom. Seul le Working-Level Américain tient compte du fait que dans la plupart des cas, dans les mines, les descendants du radon ne sont pas en équilibre avec leur parent dans l'air inhalé. Le facteur 0,5 corrigeant la mesure faite du radon dans les mines françaises tient aussi compte de ce fait mais de façon globale. Les résultats obtenus dans ce travail montrent que dans 90% des cas il y a surestimation de la dose calculée.

La définition de l'ICRP entraîne une connaissance expérimentale de f (fraction des particules radioactives non fixées). Or nous avons vu que f varie avec les concentrations en radon et en noyaux de condensation, donc avec l'activité minière et le lieu de mesure.

Aucune des méthodes décrites ci-dessus n'étant satisfaisante, le Task Group on Lung Dynamics du comité II de l'ICRP présidé par P.E. MORROW a pensé qu'un modèle respiratoire à la fois précis et concis pouvait être utilisé (Ta-1).

### MODELE DE MORROW

#### Description

Le modèle de MORROW schématisé dans la figure 67 A divise l'appareil respiratoire humain en trois régions anatomiques distinctes :

- le rhynopharynx (RP)
- la trachée de l'arbre bronchique (TB)
- la région pulmonaire proprement dite (P)

Le dépôt des particules (valeurs $D_3$, $D_4$, $D_5$) et leur localisation dans

l'appareil respiratoire sont décrits en fonction du diamètre aérodynamique moyen (AMAD) à partir des courbes de la figure 67B pour deux volumes respiratoires de 2 150 ml et 750 ml. Les transferts d'une région anatomique à une autre sont gouvernés par des paramètres dépendant surtout du caractère de solubilité ou d'insolubilité.

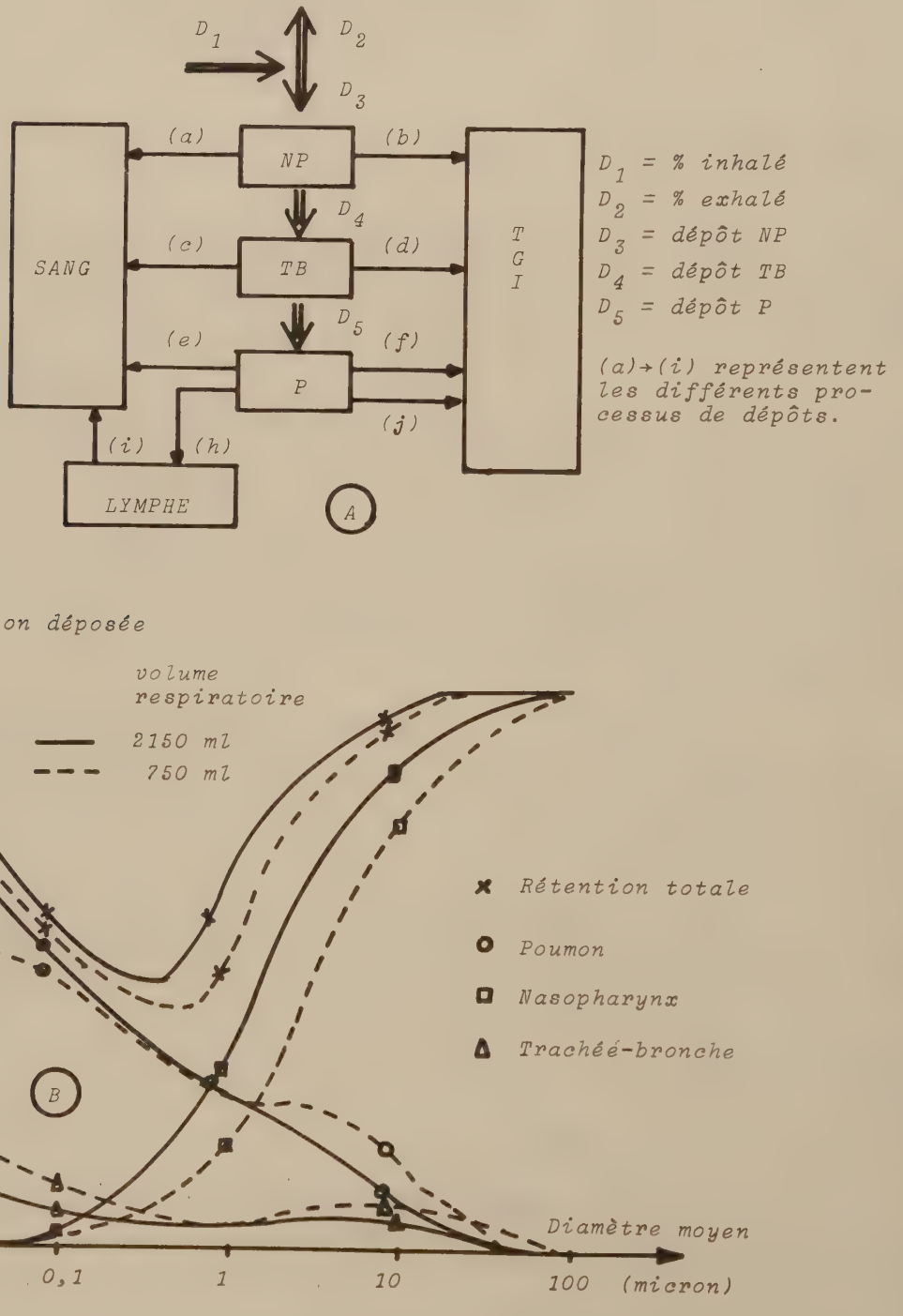



FIGURE 67 : Schéma du modèle de rétention de Morrow (A) et fraction déposée en fonction du diamètre moyen des particules. (B)

Application du modèle au calcul de la CMA

Je donnerai sous forme de tableau les résultats de CMA obtenus par HAMARD et alii. Les périodes d'élimination sont identiques à celles proposées par MORROW. Les paramètres du modèle (en considérant les descendants du radon comme substances solubles) sont :

T B

- Surface dépôt = 2,19 $m^2$
- Parcours des $\alpha$ dans les tissus = 60$\mu$
- Volume irradié = 130 $cm^3$
- Période d'épuration = 10 minutes

Le rayonnement $\beta$ est négligé.

Poumons (P)

- Période d'épuration = 30 minutes
- Volume irradié = 1000 $cm^3$

Le rayonnement $\beta$ n'est pas négligé.

| AMAD ($\mu$) | T B | | P | |
|---|---|---|---|---|
| | Facteur de dépôt | CMA 40 h Ci/$m^3$ | Facteur de dépôt | CMA 40 h Ci/$m^3$ |
| 0,40 | 0,15 | $1,2\ 10^{-7}$ | 0,6 | $10^{-7}$ |
| 0,1 | 0,06 | $5,3\ 10^{-7}$ | 0,4 | $1,6\ 10^{-7}$ |
| 0,5 | 0,04 | $4,8\ 10^{-7}$ | 0,25 | $2,5\ 10^{-7}$ |

*CMA 40 h = CMA du mélange RaA, RaB, RaC en équilibre pour 40 heures de travail.*

TABLEAU 16

On note que :

- la CMA devient moins sévère lorsque la taille des particules croît ;
- la CMA relative au RaC seul (à cause du rayonnement de 7,68 MeV du RaC') est plus sévère que celle du RaA et du RaB.

L'utilisation du modèle de MORROW rend obligatoire la connaissance de la granulométrie des aérosols inhalables et est un argument de plus pour une étude systématique des caractéristiques des aérosols présents dans les mines d'uranium. Les premiers résultats obtenus sur la taille des aérosols, radioactifs ou non, présents dans les mines d'uranium, montrent que leur rayon moyen change ; cette évolution entre $3\ 10^{-6}$cm et $3\ 10^{-5}$cm est extrêmement liée avec l'activité minière. Les CMA radon et descendants calculées à partir du modèle de MORROW pour ≠ granulométries donnent

des valeurs plus sévères pour les faibles tailles. Pour une augmentation en taille d'un facteur 2,5 (0,04 $\mu$ → 0,1 $\mu$) on note une augmentation de la CMA 40 h calculée, d'un facteur 4,5 ($1,2\ 10^{-7}$ Ci/$m^3$ → $5,3\ 10^{-7}$ Ci/$m^3$).

ETUDE EXPERIMENTALE DE LA RETENTION DES NOYAUX DE CONDENSATION DANS L'APPAREIL RESPIRATOIRE HUMAIN

Moyens et méthodes d'expérimentation

Le pourcentage de rétention est déterminé en mesurant simultanément la concentration en noyaux dans l'atmosphère respirée et dans l'air expiré. La mesure de la concentration en noyaux est effectuée à l'aide des compteurs de Pollack déjà décrits. Le temps de prélèvement de l'appareil est de 30 secondes. Plusieurs séries d'expérimentation ont été faites :

- rythme respiratoire rapide (3 respirations par prélèvement) ou lent (une respiration par prélèvement) ;
- respiration nasale ou orale.

Deux lieux d'expériences ont été choisis :

- au labo STEP (N 120 Fanay) ;
- près du chantier D 474 (N 160 Fanay).

Résultats

Au labo STEP

La concentration en radon est comprise entre 500 et 1200 pCi/l ; l'équilibre radioactif entre le radon et ses descendants est 0,7 ; 0,5 ; 0,3 ($f_A$, $f_B$, $f_C$).

La figure 68 donne la fréquence de répartition de la rétention dans les intervalles de pourcentages. L'histogramme 1 représente la respiration nasale tandis que l'histogramme 2, la respiration orale. Les résultats sont assez dispersés ; on note cependant, qu'environ 70% des valeurs de rétention sont comprises entre 0,65 et 0,80 dans les deux cas.

D 474 ( N 160)

Des valeurs identiques à celles indiquées précédemment sont notées à proximité du chantier D 474 (rétention moyenne 0,80). Les expériences n'ont pu être faites qu'en période de relative stabilité de la concentration en noyaux excluant par exemple toutes les mesures dans des fumées d'après-tir. Une dizaine de mesures ont cependant pu être faites dans des fumées de locotracteurs. Les variations de concentration étaient très rapides et d'importantes erreurs ont sûrement été commises. On obtient un ordre de grandeur de la rétention bien plus faible que dans le cas d'activité normale (0,55 au lieu de 0,80 ) avec le même expérimentateur.

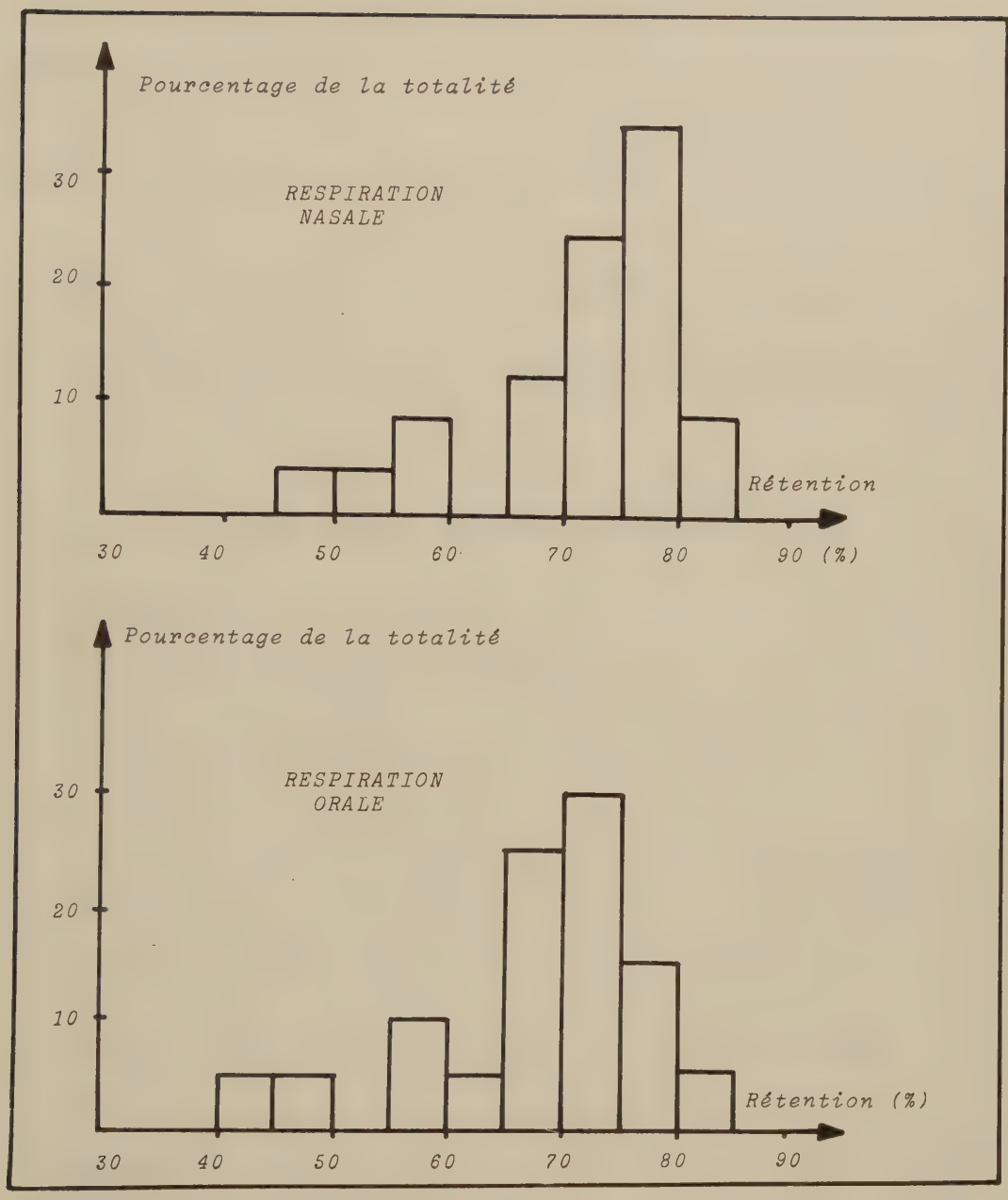



*FIGURE 68 : Histogrammes de répartition de la rétention des noyaux de condensation dans l'appareil respiratoire humain.*

Discussion

A partir de la figure 67 A, nous pouvons déterminer la fraction théorique de particules inhalées qui se déposent dans l'appareil respiratoire. Pour un AMAD de 0,07 µ (cas moyen dans la mine) nous obtenons une rétention globale d'environ 0,70 : cette valeur est de l'ordre de grandeur de ce que nous obtenons au labo 120 et en période stable au chantier.

Par contre pour un AMAD de 0, 12 µ (rayon moyen de 0,06 µ), le pourcentage déposé théoriquement est plus faible : environ 0,55. Cela corrobore les quelques résultats que nous avons pour des particules constituant les fumées de locotracteurs

dont nous avons vérifiés qu'elles possédaient une taille supérieure à 0,10 µ en diamètre).

Ces résultats sont très fragmentaires et appellent une continuation :

- en différentes atmosphères minières ;
- par des expérimentateurs différents (en connaissant exactement leurs caractéristiques respiratoires).

Cela nécessite une collaboration étroite avec les services médicaux.

---

# B I B L I O G R A P H I E


Ab-1 : ABRAHAM (P.)
Indian. J. Pur. Appl. Phys. 4, 27, (1966)

Al-1 : ALTSHULER (B.), NELSON (W.), KUSCHNER (M.)
Health Physics 10, 1137, (1964)

Ar-1 : ARCHER (V.E.), MAGNUSSON (H.J.), HOLADAY (D.A.), LAWRENCE (P.A.)
J. Occup. Med. 4, n°2, 55, (1962)

Ar-2 : ARCHER (V.E.), CARROL (B.E.), BRINTON (H.P.), SACCOMANNO (G.)
AIEA (SM 41/43) Vienne (1963)

As-1 : ASSAF (G.), GAT (J.R.)
Nucl. Instr. and Meth., 49, 29 (1967)

Av-1 : AVRIL (R.), BERGER (Ch.), DUHAMEL (F.), PRADEL (J.)
Rapport CEA 1030 (1958)

Be-1 : BEHOUNEK (F.)
Health Physics, 19, 56, (1970)

Bi-1 : BILLARD (F.), MIRIBEL (J.), PRADEL (J.)
Rapport CEA 2085, (1961)

Bi-2 : BILLARD (F.), MADELAINE (G.), MIRIBEL (J.), PRADEL (J.)
AIEA (SM 41/15), Vienne (1963)

Bi-3 : BILLARD (F.)
Rapport interne CEA, PICDM (1962)

Bl-1 : BLANC (D.), FONTAN (J.), CHAPUIS (A.), BILLARD (F.), MADELAINE (G.), PRADEL (J.
AIEA (SM 95/3 ), Vienne (1967)

Bo-1 : BOYD (J.T.), DOLL (R.), FAULDS (J.S.), LEIPER (J.)
Brit. J. Ind. Med. 27, 97, (1970)

Br-1 : BRICARD (J.)
Séminaire de Physique des Aérosols, Paris (1962-1963-1964)

Br-2 : BRICARD (J.)
Geof. Pura et Appl. 51, 237, (1962)

Br-3 : BRICARD (J.)
B. Phys. Atmos. 37, 1, (1964)

Br-4 : BRICARD (J.), GIROD (P.), PRADEL (J.)
Journal de Phys. Appl. 26, 141 A, (1965)

Br-5 : BRESLIN (A.J.), WEINSTEIN (M.S.)
Rapport d'étude n°2, 68-4 USAEC (NY) (1968)

Bu-1 : BULASHEVICH (Y.P.), KARTASHOW (N.P.)
J. Atom. Ener., 6, 5, (1960)

Ca-1 : CABROL (C.)
Thèse de spécialité n° 967, Toulouse, (1970)

Ch-1 : CHABOT (A.)
Thèse de spécialité n° 899, Toulouse, (1970)

Ch-2 : CHAMBERLAIN (A.C.), DYSON (E.D.)
Brit. J. of Rad., 29, 217, (1956)

Ch-3 : CHAPUIS (A.)
Thèse de spécialité n° 469, Toulouse,(1966)

Ch-4 : CHAPUIS (A.), LANEGRASSE (L.), LOPEZ (A.)
Radioprotection 5, n°4, 293, (1970)

Ch-5 : CHAPUIS (A.), LOPEZ (A.), FONTAN (J.), BILLARD (F.), MADELAINE (G.)
Aérosol Science 1, 243, (1970)

Co-1 : COSTA-RIBEIRO (C.), THOMAS (J.), DREW (R.T.), WRENN (M.E.) EISENBUD (M.)
Contrat n° AT (30.1), 3086, Inst. of Env. Med. (N.Y.) (1968)

Co-2 : COUTURAUD (J.C.)
Thèse de spécialité n° 976, Toulouse (1970)

Cr-1 : CRAFT (B.F.), OSER (J.L), NORRIS (W.)
Amer. Ind. Hyg. Ass. J. 27, 154, (1966)

Cu-1 : CUNNINGHAM (E.)
Proc. Roy. Soc. 83, 357, (1910)

Da-1 : DALH (A.H.), SCHIAGER (K.J.), REECE (R.J.), JACOE (P.W.)
COO 1500-1 USAEC, Colorado St. Univ. (1966-1967)

Da-2 : DAVIES (C.N.)
Ann. Occup. Hyg. 10, (1967)

De-1 : DELOS (Y.)
Thèse de spécialité n° 932, Toulouse (1970)

De-2 : DE MARCUS (W.C.), THOMAS (J.W.)
O.R.N.L. 16, 1413,(1952)

De-3 : DE VILLIERS (A.J.), WINDISH (J.P.)
Brit. J. of Ind. Med. 21, n°3, 94, (1964)

Do-1 : DONALSON (P.R.)
Health Physics 16, 63, (1969)

Du-1 : DU TOIT (R.S.)
AIEA (SM 41/11), Vienne, (1963)

Du-2 : DUGGAN (M.J.), SOILLEUX (P.J.), STRONG (J.C.), HOWELL (D.M.)
Brit. J. Ind. Med., 27, 106, (1970)

Du-3 : DUGGAN (M.J.), HOWELL (D.M.), SOILLEUX (P.J.)
Nature 219, 1149, (1968)

Du-4 : DUGGAN (M.J.), HOWELL (D.M.)
Int. J. of Appl. Rad. et iso. 19, 865, (1968)

Du-5 : DUPORT (P.)
Communication personnelle (octobre 1970)

Dy-1 : DYSON (E.D.), BEACH (S.A.)
Health Physics, 15, 385, (1968)

Ev-1 : EVANS (R.D.), GOODMAN (C.)
J. Ind. Hyg. Toxi., 22, n°3, 89, (1940)

Ev-2 : EVANS (R.D.)
Hearing Before 90$^{th}$ Congress, Part. 2, 1188, (1967)

Fi-1 : FISCHER (H.L.)
Health Physics 19, 697, (1970)

Fo-1 : FONTAN (J.)
Thèse doctorat d'état n° 218, Toulouse, (1964)

Fr-1 : FRIEDLANDER (S.K.), PASCERI (R.E.)
J. of Atmos. Sci., 571, (1965)

Fu-1 : FUCHS (N.A.), SUTUGIN (A.G.)
Br. J. Appl. Phys., Vol 14, 39, (1963)

Fu-2 : FUCHS (N.A.), STECHKINA (I.B.), STAROSSELSKI (V.I.)
Br. J. Appl. Phys., Vol. 13, 280, (1962)

Fu-3 : FUCHS (N.A.)
The Mechanics of Aerosols Pergamon Press, (1964)

Fu-4 : FUSAMURA (N.), KUROSAWA (R.), MISAWA (H.)
Health Physics 10, 909, (1964)

Fu-5 : FUSAMURA (N.), KUROSAWA (R.)
AIEA SM 95/25 Vienne (1967)

Fu-6 : FUSAMURA (N.), KUROSAWA (R.), MARUYAMA (M.)
AIEA, SM 95/26 Vienne, (1967)

Ge-1 : GEIGER (E.L.)
Health Physics, 13, 4, 407, (1967)

Gi-1 : GILLILAND (J.C.), BELL (R.F.)
AIEA, (SM 41/35), Vienne, (1963)

Go-1 : GOTCHY (R.L.)
U.S.A.E.C. n° AT (11-1), 1500 Fort Collins (1968)

Go-2 : GORMLEY (R.G.), KENNEDY (M.)
Proc. R.I.A. 52A, 163, (1949)

Gr-1 : GREEN (H.L.), LANE (W.R.)
"Particulate clouds", Spon, Londres (1957)

Gu-1 : GUEDALIA (D.)
Thèse de spécialité, n° 548, Toulouse, (1967)

Ha-1 : HALVAS (J.), TELICH (J.), GONZALEZ (R.)
AIEA (SM 41/47) Vienne (1963)

Ha-2 : HARRIS (S.J.)
N.Y. State Dept. of Labor, Monthly Review, 33, 10 (1954)

Ha-3 : HARLEY (J.H.)
Nucleonics II, n°7, 12 (1953)

Ha-4 : HARTING (F.H.), HESSE (W.)
Viert. F. Gericht. Med. u Offen. Gesundheit. 30, 296, (1879)

Ha-5 : HASENCLAVER (O.)
STAUB Dtch. 21, n°7, 281, (1961)

Ho-1 : HOLADAY (D.A.)
AMA Arch. Ind. Health 11, 163, (1955)

Ho-2 : HOLADAY (D.A), RUSHING (D.E.), COLEMAN (R.D.), WOOLRICH (P.F.), KUSNETZ (H.L.)
BALE (W.F.)
US Dépt. Pub. Health Service Publ. n° 494 (1957)

Ho-3 : HOLADAY (D.A.), DOYLE (H.N.)
AIEA (SM 41/42), Vienne, (1963)

Ho-4 : HOLADAY (D.A.)
AIEA (SM 41/41), Vienne, (1963)

Ho-5 : HOLADAY (D.A.)
Health Physics, 16, 547, (1969)

Hu-1 : HUERTAS (M.L.), MARTY (A.M.), FONTAN (J.), BLANC (D.)
J. of Atmos. Sci. 26, (1969)

Hu-2 : HUANG (C.M.), KERKER (M.), MATIJEVIC (E.)
J. of Col. and Inter. Sci. 33, n°4, 529, (1970)

Ic-1 : ICRP
Report of Committee II, Pergamon Press., (1959)

Ir-1 : IRANZO (E.), LLARTE (J.)
AIEA (SM 41/8), Vienne, (1963)

Is-1 : ISRAEL (H.)
Atmospheric electricity, Vol.1, I.P.S.T. (1970)

Ja-1 : JACOBI (W.)
Geof. pura e appl. 50, n°3, 260, (1961)

Ja-2 : JACOBI (W.)
Health Physics 10, 1163, (1964)

Ja-3 : JACOE (P.W.)
Arch. Ind. Hyg. and Occup. Health 8, 118 (1953)

Ja-4 : JAMMET (H.), MECHALI (D.), LAFUMA (J.)
AIEA (SM 41/95), Vienne (1963)

Ka-1 : KARTACHEV (N.P.)
Atomnaia energuia 20, n°5, 112, (1966)

Ke-1 : KEEFE (D.), NOLAN (P.J.)
Proc. R.I.A. 60, sect A (1959)

ku-1 : KUSNETZ (H.L.)
Amer. Ind. Hyg. Ass. Quart. 17, 85 (1956)

La-1 : LANEGRASSE (L.)
Thèse d'université, soutenance prévue en 1972.

La-2 : LANGSTROTH (G.O.), GILLESPIE (T.)
Chem. Rev. 44, 337, (1949)

La-3 : LASSEUR (C.)
Thèse d'Université n° 253, Toulouse (1970)

La-4 : LANGEVIN (P.)
Ann. Chim. Phys. 8, 5, 245, (1905)

Le-1 : LEROY (B.)
Thèse de spécialité n°850,Toulouse (1969)

Le-2 : LEVICH (V.)
Physico - chemical Hydrodynamics Acad. Sci. URSS, Moscou, (1952)

Li-1 : LINDEKEN (L.)
Rapport USAEC UCRL 5342, (1959)

Li-2 : LINDEKEN (L.), PETROK (K.F.)
Health Physics 12, 683, (1966)

Li-3 : LINDEKEN (L.)
J. of Geophys. Res. 73, n°8, (1968)

Lo-1 : LOCKART (L.B.), PATTERSON (R.L.), SAUNDERS (A.W.)
J. of Geophys. Res. 70, n°24, (1965)

Lo-2 : LOPEZ (A.)
Thèse de spécialité n° 769 Toulouse, (1969)

Lo-3 : LOPEZ (A.), CHAPUIS (A.), FONTAN (J.), BILLARD (F.), MADELAINE (G.)
Aerosol Science 1, 235, (1970)

Lo-4 : LOVETT (D.B.)
Health Physics, 16, 629, (1969)

Lo-5 : LOEB (L.B.)
Electrical Coronas "Their basic physical mechanisms", 225,227 (1965)

Lu-1 : LUCAS (H.F.)
Rev. Sci. Inst. 28, 680, (1957)

Lu-2 : LUCAS (H.F.)
The Natural Radiation Environnement Chicago Press. P. 315, (1969)

Lu-3 : LUDWIG (P.), LORENSER (E.)
Ztschs. f. Phys. 22, 178, (1924)

Ma-1 : Mc CURDY (D.E.)
Special report USAEC AT (11-1), 1500 Fort Collins, Colorado (1969)

Ma-2 : Mc GREEVY (G.)
Arch. für Meteorology 14, 2, (1964)

Ma-3 : Mc GREEVY (G.)
J. Rech. Atmos. 121, (1966)

Ma-4 : MADELAINE (G.)
Thèse de doctorat ès sciences,Paris(1968)

Ma-5 : MADELAINE (G.), PARNIAMPOUR (A.)
Ann. Occup. Hyg. 10, 31, (1967)

Ma-6 : MARKOV (K.P.), RIABOV (N.V.), STAS (K.N.)
Atomnaia Energuia 12, n°4, 315, (1962)

Ma-7 : MARTZ (D.E.), HOLLEMAN (D.F.), Mc CURDY (D.E.), SCHIAGER (K.J.)
Health Physics 17, 131, (1969)

Me-1 : MECHALI (D.), PRADEL (J.)
AIEA (SM 41/26) Vienne, (1963)

Me-2 : MEGAW (W.J.), WIFFEN (R.D.)
J. Air Water Pol., 7, 501, (1963)

Mi-1 : MILLER (S.E.), HOLADAY (D.A.), DOYLE (H.N.)
AMA Arch. Ind. Health, 48, (1957)

Mi-2 : MILLIKAN (R.A.)
Physical Review, Série II, 21, 3, 217, (1923)

Mi-3 : MISAWA (H.)
AIEA (SM 41/2), Vienne, (1963)

Mo-1 : MOHNEN (V.)
Thèse de doctorat, Munich (1968)

Mu-1 : MURTHY (S.V.), HAMBIAR (V.J.)
AIEA (SM 41/50), Vienne (1963)

No-1 : NOLAN (P.J.), DOHERTY (D.J.)
Proc. R.I.A. 53, Sect. A, 163, (1950)

No-2 : NOLAN (P.J.), O'CONNOR (P.)
Proc. RIA 57 Sect.A, (1955)

Pe-1 : PELLERS (S.)
Human Biol. 11, 130, (1939)

Pi-1 : PIRCHAN (A.), SIKL (H.)
Am. J. of Cancer, 16, 681, (1932)

Pl-1 : PLUVINAGE (P.)
Thèse de doctorat ès sciences, Paris (1943)

Po-1 : POLH (E.)
AIEA (SM 41/56), Vienne (1963)

Po-2 : POLH-RULING (S.), POLH (E.)
Health Physics 16, 579, (1969)

Po-3 : POLLACK (L.W.), METNIEKS (A.L.)
Geof. Pura e Appli. 37, 183, (1957)

Po-4 : POLLACK (L.W.), METNIECKS (A.L.)
Geof. Pura e Appli. 44, 233, (1958)

Pr-1 : PRADEL (J.)
Energie Nucléaire, 1, n°3, 77, (1959)

Pr-2 : PRADEL (J.)
Annales des mines VI, 83, (1961)

Pr-3 : PRADEL (J.), CHAPUIS (A.), LOPEZ (A.), CABROL (C.)
Radioprotection 5, n° 263, (1970)

Ra-1 : RAABE (O.), WRENN (M.D.)
Health Physics 17, 593, (1969)

Re-1 : RENOUX (A.)
Thèse de doctorat d'Etat, Paris (1965)

Re-2 : REPORT n°8
Staff report of the Fed. Rad. Council. (1967)

Ri-1 : RICH (T.A.), POLLACK (L.W.), METNIEKS (A.L.)
Geof. Pura e Appli. 44 (1959)

Ro-1 : ROCK (R.L.), LOVETT (D.B.), MELSON ( S.C.)
Health Physics, 16, 617, (1969)

Ro-2 : ROLLE (R.)
Ann. Ind. Hyg. Ass. J., 153, (1969)

Ro-3 : ROSTOSKI (O.), SAUPE (E.), SCHMORL (G.)
Z. f. Krelsforsch. 23, 360, (1926)

Sa-1 : SACCOMANNO (G.), ARCHER (V.), SAUNDERS (R.P.), JAMES (L.A.), BECKLER (P.A.)
Health Physics 10, 1195, (1964)

Se-1 : SERDJUKOVA (A.S.), SAVENKO (F.I.)
Izvest. Vyrrssh. n°2, (1968)

Si-1 : SINCLAIR (D.), LA MER (V.)
Chem. Rev. 44, 245, (1949)

Sm-1 : SMITH (C.F.)
AIEA (SM 41/52), Vienne (1963)

So-1 : SOILLEUX (P.J.)
Health Physics 18, 245, (1970)

Sm-2 : SMOLUKOWSKI (M.)
Z. Physik. Chem., 92, 129, (1917)

St-1 : STEWART (J.R.)
AIEA (SM 41/65), Vienne (1963)

St-2 : STEWART (C.G.), SIMPSON (S.D.)
AIEA (SM 41/74), Vienne (1963)

Ta-1 : TASK group on lung dynamics
Health Physics 12, 173, (1966)

Th-1 : THOMAS (J.W.), LE CLARE (P.C.)
Health Physics, 18, 113, (1970)

Th-2 : THOMAS (J.W.)
Health Physics 19, 691, (1970)

Th-3 : THOMAS (J.W.)
Hasl 202 USAEC (1968)

Th-4 : THELLIER (O.)
Ann. Inst. Physique du Globe 19, Paris (1941)

To-1 : TOWNSEND (J.)
Phil. Trans. 193, 129, (1900)

Ts-1 : TSIVOGLOU (E.C.), AYER (H.E.)
A.M.A. Arch. Ind. Hyg. 8, 125, (1953)

Ts-2 : TSIVOGLOU (E.C.), AYER (H.E.), HOLADAY (D.A.)
Nucleonics 11, 40, (1953)

Tw-1 : TWOMEY (S.)
Bull. observ. Puy de Dôme 4, 173, (1962)

Vi-1 : VIRAGH (E.), URBAN (A.)
2ème I.R.P.A. Congrès de Brighton (1970)

Wa-1 : WAGONER (J.K.), ARCHER (V.E.), CAROLL (B.E.), HOLADAY (D.A.), LAWRENCE (P.A.)
AIEA (SM 41/43), Vienne, (1963)

Wi-1 : WILLIS (E.), KERKER (M.), MATIJEVIC (E.)
J. of Col. and Int. Sci. 23, 182, (1967)

Ze-1 : ZELENY (J.)
Phys. Rev. 195 A, 193, (1901).

AUTORISATION DE SOUTENANCE ACCORDEE
TOULOUSE, le 24 NOVEMBRE 1971

Le Président de l'U. P. S.

L. LARENG